

**Untersuchung elektronischer Anregungs- und
Beugungseffekte sowie Wachstum, Struktur und
magnetischer Eigenschaften ultradünner 3d-Metallfilme
auf Cu(001) mittels streifender Ionenstreuung**

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium

(Dr. rer. nat.)

im Fach Physik

eingereicht an der

Mathematisch- Naturwissenschaftlichen Fakultät I

der Humboldt-Universität zu Berlin

von

Dipl.-Phys. Tobias Bernhard

geboren am 28.01.1973 in Magdeburg

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin

Prof. Christoph Marksches

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I

Prof. Dr. Thomas Buckhout, PhD

Gutachter: 1. Prof. Dr. Helmut Winter (HU Berlin)
 2. Prof. Dr. Jürgen Kirschner (MPI Halle)
 3. Prof. Dr. Wolfgang Kuch (FU Berlin)

eingereicht am: 14.07.2006

Tag der mündlichen Prüfung: 23.11.2006

Kurzzusammenfassung

Die vorliegende Arbeit untergliedert sich in drei aufeinander aufbauende Themenkomplexe. Der erste Komplex umfasst Untersuchungen zum Nachweis und zur Quantifizierung von Beugungsanteilen in der ioneninduzierten Elektronenemission (IILEED). Dazu wurden bei der streifenden Streuung schneller He und H-Ionen an Cu(001) energiedispersive zweidimensionale Winkelverteilungen emittierter Elektronen aufgenommen. Es konnten reflexartige Intensitäten in der ioneninduzierten Elektronenemission nachgewiesen werden, deren Raumwinkeländerungen in Abhängigkeit von Anregungsrichtung und Detektionsenergie mittels einer modifizierten Ewaldkonstruktion quantitativ nachvollziehbar sind. Die beobachteten Beugungsstrukturen geben Aufschluss über den ursächlichen elektronischen Anregungsprozess an der Oberfläche.

Im zweiten Teil wird die ioneninduzierte Elektronenemission beim Wachstum ultradünner 3d-Übergangsmetallfilme (Co, Fe, Mn) auf Cu(001) untersucht. Die streng zum jeweiligen Wachstumsstadium korrelierten Änderungen der Energiespektren und Anzahlverteilungen emittierter Elektronen (SEE-Oszillationen), sind hauptsächlich auf binäre Stossprozesse der Projektile mit Stufenkanten zurückzuführen. Die SEE-Oszillationen können zur in-situ Wachstumsanalyse und Bedeckungsbestimmung herangezogen werden.

Im dritten Abschnitt wird eine neue Messmethode zur Analyse komplex rekonstruierter Oberflächenstrukturen vorgestellt. Die Methode der „Ionenstrahltriangulation“ (IST) basiert auf der relativen Änderung der Anzahlverteilung emittierter Elektronen bei azimuthaler Drehung der Probenoberfläche. Bestimmt werden die azimuthale Richtung und die relative Breite von Oberflächenkanälen in der obersten atomaren Lage. Die Registrierung der pro Streuprozess emittierten Elektronenanzahl eröffnet erstmalig eine quantitative Simulation von IST-Messkurven. Auf dieser Grundlage können mittels IST die lateralen Atompositionen langreichweitig geordneter Oberflächenstrukturen auf mehrere hundertstel Angström genau festgelegt werden. Das hohe strukturanalytische Potential dieser Messmethode demonstrieren IST-Untersuchungen an den Strukturphasen der Systeme Mn/Cu(001) und Fe/Cu(001).

Schlagworte:

Ionenstreuung, Elektronenemission, Elektronenbeugung, Ionenstrahltriangulation, Fe/Cu(001), Mn/Cu(001), Strukturanalyse

abstract

H^+ and He^+ ions with an energy of 25 keV are scattered under a grazing angle of incidence from a clean and flat Cu(001) surface. For specific azimuthal orientations of the crystal surface with respect to low index directions in the surface plane we observe the ion induced emission of electrons with a conventional LEED (low energy electron diffraction) setup. By operating the instrument in an energy dispersive mode we find intensity distributions of emitted electrons which can unequivocally be ascribed to diffraction effects at the target surface. From this ion induced LEED-reflexes (IILEED) we get important information about the electron excitation- and emission effects during the scattering process.

In the second part of this work we investigate the correlation between thin-film growth (Co, Fe, Mn on Cu(001)) and electron emission in the regime of grazing ion scattering. The “rough” surface of uncompleted layers increase the probability of binary collisions of incident ions with individual atoms at the surface. The energy spectras and the number distribution of emitted electrons are substantially influenced by these “violent” collisions and allow us to monitor growth of thin films via simple measurements of target current or from energy spectra of emitted electrons. The method provides excellent signals and is also applicable in the regime of poor layer growth.

By making use of ion beam triangulation (IBT), direct information on the atomic structure of thin films and substrate surfaces is obtained. We discuss in the third part of this work a new variant of this method based on the detection of the number of emitted electrons. The data are analyzed via computer simulations using classical mechanics which provides a quantitative analysis with respect to projectile trajectories. This new detection scheme allows the determination of the in-plane structure of reconstructed thin films and surfaces with high precision. The impressed potential of this method is demonstrated by quantitative analysis of the structural phases of Fe and Mn on Cu(001).

Keywords:

ionscattering, electronemission, electrondiffraction, Mn/Cu(001), Fe/Cu(001), ionbeamtriangulation, surfacestructure

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung.....	1
2	Experimentelle Methoden.....	3
2.1	Streifende Ionenstreuung.....	3
2.2	Beugung niederenergetischer Elektronen (LEED).....	6
2.3	Auger-Elektronen-Spektroskopie (AES).....	7
2.4	Magneto-Optischer Kerr-Effekt (MOKE).....	10
2.5	Einfang polarisierter Elektronen (EC).....	12
3	Experiment.....	15
3.1	Kleinbeschleuniger und Streukammer.....	15
3.2	Aufbau und Funktionsweise des Elektronendetektors.....	18
3.3	Probenmagnetisierung und magnetische Messungen.....	20
3.4	Das SPA-LEED System.....	24
4	Ioneninduzierte Elektronenbeugung.....	29
4.1	Ioneninduzierte Elektronenanregung.....	29
4.2	Plasmonanregung vs. Beugung von Blochwellen.....	32
4.3	Nachweis von Beugungsreflexen.....	36
4.4	Modifizierte Ewaldkonstruktion und Energieabhängigkeit.....	41
4.5	Azimutale Abhängigkeit der IILEED-Reflexe.....	53
4.6	Zusammenfassung.....	59
5	Wachstumskontrolle mittels ioneninduzierter Sekundärelektronenemission.....	65
5.1	Wachstumsbedingte Oszillationen der Gesamtelektronenemission bei der streifenden Ionenstreuung.....	65
5.2	Bedeckungsabhängige Änderungen von Elektronenspektren.....	72
5.3	Wachstumsbedingte Oszillationen der Elektronenemission in Abhängigkeit vom polaren Einfallswinkel.....	78
5.4	Änderungen der Anzahlstatistik emittierter Elektronen während des Filmwachstums.....	82
5.5	Zusammenfassung.....	85
6	Oberflächenstrukturanalyse mittels Ionenstrahltriangulation.....	87
6.1	Methodische Grundlagen.....	88
6.2	Das Einbruchkriterium.....	94
6.3	Simulation der IST-Kurven mittels Einbruchkriterium.....	99
6.4	Oberflächensensitivität der Ionenstrahltriangulation.....	104

6.5	Normierung der IST-Kurven	109
6.6	Zusammenfassung	111
7	Wachstum und Struktur von Mn auf Cu(001).....	114
7.1	Das System Mn/Cu(001)	114
7.2	Das temperaturabhängige Wachstum von Mn auf Cu(001).....	116
7.3	Die Cu(001)c(8x2)Mn-Struktur	119
7.4	Der temperaturabhängige c(8x2) nach c(2x2)-Phasenübergang	127
7.5	Die Cu(001)c(12x8)Mn-Phase	129
7.6	Die Cu(001)p2gg(4x2)Mn-Phase	134
7.7	Struktur der Cu(001)p2gg(4x2)Mn-Legierungsphase	145
7.8	Zusammenfassung	155
8	Wachstum und Struktur von Fe auf Cu(001)	156
8.1	Das System Fe/Cu(001).....	156
8.2	Die RT I-Phase.....	158
8.3	Die RT II-Phase	162
8.4	Zusammenfassung	166
9	Zusammenfassung.....	167
	Literaturverzeichnis	171
	Publikationsliste.....	176
	Danksagung	178
	Eidesstattliche Erklärung.....	179

1 Einleitung

Oberflächen, Grenzflächen und dünne Filme können aufgrund ihrer reduzierten Dimension im Vergleich zu Volumenkristallen, neuartige chemische und strukturelle und damit eng verknüpft neue elektronische und magnetische Eigenschaften aufweisen. Insbesondere heteroepitaktische Systeme nichtmagnetischer Substrate und ferromagnetischer 3d-Übergangsmetalle zeigen interessante magnetische Effekte, wie z.B. die Interlagenaustauschkopplung, den Riesenmagnetowiderstand und die oberflächeninduzierte magnetische Anisotropie (z.B.: [PM90], [BB88]). Grundlegend für das Verständnis dieser magnetischen Phänomene ist eine genaue Kenntnis der strukturellen und chemischen Eigenschaften der zu untersuchenden Systeme, die ihrerseits empfindlich von Filmwachstumsbedingungen, wie Substratpräparation, Temperatur, Aufdampftrate etc. abhängen. Der Vielzahl der damit verbundenen physikalischen Fragestellungen kann nur durch den Einsatz unterschiedlicher komplementärer Messmethoden begegnet werden, deren Einzelergebnisse zum einen zur Vervollständigung eines konsistenten Gesamtbildes beitragen, zum anderen auch Diskussionsgrundlage für weitergehende Untersuchungen liefern, verbunden mit einer stetigen Neu- und Weiterentwicklung oberflächenanalytischer Messmethoden.

Eine dieser Methoden zur Untersuchung von Festkörperoberflächen ist die streifende Streuung von leichten Ionen. Dieses relativ neue Verfahren zeichnet sich durch eine hohe Empfindlichkeit auf die oberste Atomlage aus. Die bei der Oberflächenwechselwirkung auftretenden Effekte, wie Änderung der Projektiltrajektorien, induzierte Elektronenemission, Ladungsaustauschprozesse etc. eröffnen ein breites Spektrum an oberflächenanalytischen Möglichkeiten. So kann z. B. über die Ausbeute und Winkelverteilung gestreuter Projektile *in-situ* das Filmwachstum charakterisiert und über den Einfang spinpolarisierter Metallelektronen in angeregte atomare Projektilzustände auf magnetische Eigenschaften der Oberfläche geschlossen werden (z.B.: [RA82], [PF98]).

Ein für die Oberflächencharakterisierung besonders attraktives Feld stellt in diesem Zusammenhang die Ioneninduzierte Elektronenemission dar. Zum Beispiel lassen die bei der Interaktion von Projektil und Oberfläche emittierten Augerelektronen quantitative Rückschlüsse auf die stöchiometrische Zusammensetzung der obersten atomaren Lage zu (z.B.: [PI96]). Über die Spinpolarisation der emittierten Elektronen kann der magnetische Zustand der Oberfläche untersucht werden [RW03]. Auch führt bei Änderung des azimutalen Einfallswinkels die periodische Atomanordnung an der Oberfläche zu Übergängen von planarer zu axialer Gitterführung der Ionen. Die damit verbundenen messbaren Änderungen der Elektronenemission liefern Realrauminformationen über die atomare Anordnung der Oberfläche [PB03].

In diesem Kontext gliedert sich die vorliegende Arbeit in zwei aufeinander aufbauende Themenkomplexe. Basierend auf weitgehend anwendungsorientierten Untersuchungen zur Winkel-

Kapitel 1

und Energieabhängigkeit der Elektronenemission werden im ersten Abschnitt (Kapitel 4 bis 6) neue methodische Entwicklungen zur Wachstums- und Strukturanalyse ultradünner Metallfilme vorgestellt. Dabei führen einige Voruntersuchungen, insbesondere zur ioneninduzierten Elektronenbeugung, auf Phänomene, die über einen reinen Anwendungsbezug hinaus von grundlegendem physikalischen Interesse sind und dementsprechend ausführlicher behandelt werden (Kapitel 4).

Im zweiten Abschnitt (Kapitel 7 und 8) wird das strukturanalytische Potential der weiterentwickelten ionenstrahlgestützten Messmethode, der so genannten Ionenstrahltriangulation, an stabilen und metastabilen Phasen von 3d-Übergangsmetallfilmen (Mn, Fe) auf Cu(001) vorgestellt. Ergänzt werden die strukturellen Analysen durch chemische und magnetische Messungen an den jeweiligen heteroepitaktischen Systemen.

Die vorliegende Arbeit wurde im Rahmen des Sonderforschungsbereiches 290 „Metallische dünne Filme: Struktur, Magnetismus und elektronische Eigenschaften“ und in der Folgezeit als Projekt der Deutschen Forschungsgemeinschaft (Wi 1336) am Lehrstuhl „Physik der Grenzflächen und dünnen Schichten“ unter Leitung von Prof. Dr. H. Winter am Institut für Physik der Humboldt-Universität zu Berlin realisiert.

2 Experimentelle Methoden

2.1 Streifende Ionenstreuung

Die hier vorgestellten Messmethoden zur Analyse von Wachstum, Struktur und Magnetismus ultradünner metallischer Filme basieren vornehmlich auf der streifenden Streuung schneller Ionen (z.B.: [SH77], [SV83], [WI02]). Dabei werden leichte Projektile (H, He) mit Primärenergien von $E_0=25\text{-}30\text{ keV}$ unter einem flachen polaren Einfallswinkel $\phi_{in}=1.0^\circ\text{-}2.0^\circ$ an der atomar glatten Substratoberfläche (Target) gestreut (Abb. 2.1 a). Aufgrund der aus einer so gewählten Streugeometrie folgenden geringen Senkrechterenergie der Projektile bezüglich der Oberfläche

$$E_{\perp} = \sqrt{p_{\perp}^2 / 2M_P} = E_0 \sin^2 \phi_{in} \quad (2.1)$$

von $E_{\perp} \approx 20\text{ eV}$ kann die Wechselwirkung als eine Reihe korrelierter repulsiver Kleinwinkelstöße mit Kristallatomen der Oberfläche beschrieben werden. Für den idealisierten Fall der planaren Oberflächengitterführung (Abb. 2.1 b) werden die Projektile elastisch am gemittelten

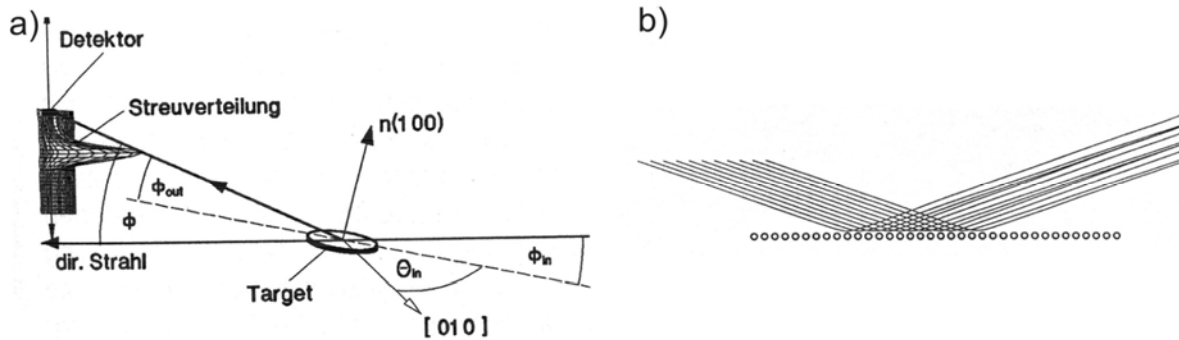


Abb. 2.1: Prinzip der streifenden Streuung: (a) Richtung des reflektierten Strahls und Oberflächennormale spannen die Streuebene auf, aus [TI01]; (b): planare Oberflächengitterführung als Folge vernachlässigbarer Potentialkorruption, auf die Projektile wirkt ein ebenes Kontinuumpotential

ebenen Kontinuumpotential der Oberflächenatome spiegelreflektiert, ohne dass die Ionen in den Kristall eindringen ([ZB85], [GE74]). Dabei liegt der minimale Projektilabstand zur obersten Atomlage ($\sim 0.5\text{ \AA}$) unterhalb des Interlagenabstandes des Kristalls (Cu(001): 1.805 \AA), so dass reale Oberflächenstrukturen wie Stufenkanten, Versetzungen, etc. den korrelierten Streuprozess massiv stören, einhergehend mit Änderungen experimentell zugänglicher Observablen (z.B. Winkel- und Energieverteilung sowie Ladungszustand zurück gestreuter Ionen, Emission von Sekundärteilchen etc.).

Kristallitverkipungen und Oberflächenpunktdefekte, aber auch thermische Auslenkungen der Atome, führen zur gaußartigen räumlichen Aufweitung des spekulär reflektierten Strahls.

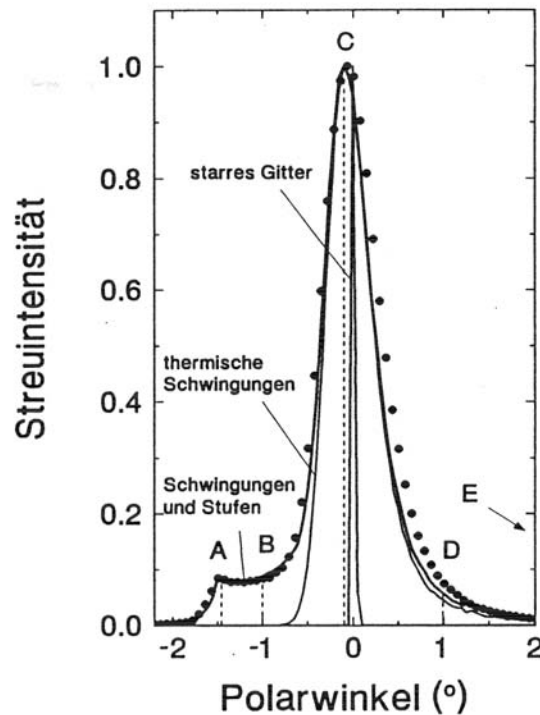


Abb. 2.2: gemessene (•) und berechnete (–) polare Winkelverteilung für die streifende Streuung von 25 keV He⁺-Ionen: thermische Schwingungen führen zur symmetrischen Verbreiterung der δ -Verteilung einer idealen Oberfläche (Bereich C), Wechselwirkungen mit Abwärtstufen erzeugen die unterspekuläre Fußstruktur (A,B), wohingegen Aufwärtstufen zur überspekulären Intensität (D,E) beitragen, aus [PF98]

Wohingegen Stufenkanten den Anteil spekulär reflektierter Ionen verringern und eine charakteristische subspekuläre Fußstruktur hervorrufen (Abb. 2.2). Über den Vergleich mit der Winkelverteilung klassisch simulierter Projektiltrajektorien können quantitative Rückschlüsse auf die Oberflächenmorphologie gezogen werden [PI00]. Insbesondere gestattet der starke Einfluss von Oberflächendefekten auf die Spekularintensität die *in-situ* Charakterisierung von Filmwachstumsprozessen: Die während der Nukleation von Adsorbatinseln zunehmende Defektdichte führt zur erhöhten Aufstreuung von Projektilen verbunden mit einer Abnahme der Spekularintensität. Anschließendes laterales Inselwachstum (Aggregation) verringert die Defektdichte, so dass bis zum Zusammenschluss der Adsorbatinseln (Koaleszenz) die Spekularintensität wieder ansteigt. Aus den sich als Funktion der Aufdampfzeit, bei konstant gehaltener Temperatur und Aufdampfrate, ergebenden Intensitätsoszillationen kann die Wachstumsart bestimmt und der Füllungsgrad der einzelnen Filmlagen abgeschätzt werden. Neben der qualitativen Bestimmung des Wachstumsmodus können aus dem Vergleich mit Simulationsrechnungen statistische, wachstumsrelevante Größen wie Sättigungsinseldichte, mittlere laterale Inselausdehnung, Adatom-Diffusionsbarriere und Stufenkantendichte gewonnen werden [PF98].

Eine weitere mit dem Streuprozess korrelierte Observable ist die Ioneninduzierte Elektronenemission. Bei planarer Oberflächengitterführung tauchen die Projektile in den Valenzelektronengasausläufer der Targetoberfläche ein und regen durch kinetische Stoßprozesse Kristallelektronen an. Die aufgrund dieser Anregungen emittierten Elektronen können energie-, winkel- oder anzahl aufgelöst detektiert werden. Andere konkurrierende Emissionsszenarien wie z.B. die Potentialemission, Innerschalenionisation oder Promotion spielen hier wegen vergleichsweise geringen Emissionsraten eine untergeordnete Rolle [WI02]. Änderungen der Projektiltrajektorien, z.B. durch Wachstumsprozesse an der Oberfläche oder Variationen der Streusymmetrie haben dramatische Auswirkungen auf die Elektronenemission. Im Rahmen dieser Arbeit wird gezeigt dass die Ioneninduzierte Elektronenemission ein sehr sensibles Werkzeug zur Überwachung von Wachstumsprozessen und zur Bestimmung von Strukturen an der Oberfläche ist.

Fällt der azimutale Einfallswinkel θ_{in} (Abb.2.1) mit einer niederindizierten Oberflächen-Gitterrichtung zusammen, verliert aufgrund der geänderten Symmetriebedingung die planare Oberflächengitterführung ihre Gültigkeit. Die Streuung wird dann von zylindrischen Kontinuumspotentialen der Atomketten bestimmt [ER65]. Die bei einem solchen Wechsel von planarer zu axialer Streusymmetrie verbundene Erhöhung der mittleren Elektronenausbeute wird genutzt, um Aufschluss über Richtung und relative Breite der zwischen den Atomketten liegenden Kanäle zu gewinnen. Auf der Basis einer Triangulationskurve, d.h. der Elektronenausbeute als Funktion des azimutalen Einfallswinkels, können wichtige strukturelle Parameter wie z.B. Bindungswinkel, interatomarer Abstand, periodische laterale Atomanordnung der Substrat- oder Adsorbatoberfläche bestimmt werden. Entgegen der früheren Annahme, axiale Oberflächengitterführung sei ursächlich für die Erhöhung der mittleren Elektronenausbeute, wird auf der Basis elektronenanzahl aufgelöster Emissionsspektren (Anzahl je Projektil emittierter Elektronen) gezeigt, dass die ansteigende Elektronenemission auf eine erhöhte Eindringwahrscheinlichkeit der Projektile in subsurface- und tiefere Regionen der Oberfläche zurückzuführen ist. Diese grundlegende Einsicht eröffnet einen neuen Zugang zur rechnergestützten Simulation von Elektronenanzahltriangulationskurven. Zusammen mit komplementären qualitativen LEED-Messungen ermöglicht die Ionenstrahltriangulation die Erstellung eines detaillierten Strukturmodells, insbesondere auch für Strukturen mit großen Einheitszellen. Im Rahmen dieser Arbeit wird gezeigt, dass die messtechnisch verbesserte Variante der Ionenstrahltriangulation zu einer der wenigen oberflächenanalytischen Methoden gehört, die die laterale Position der Oberflächenatome im Bereich von einigen hundertstel Angström festlegen kann.

2.2 Beugung niederenergetischer Elektronen (LEED)

Neben der expliziten Nutzung des SPA-LEED-Systems zur Untersuchung von Beugungserscheinungen bei der ioneninduzierten Elektronenemission (Kapitel 4) wurden ergänzend zur Ionenstrahltriangulation qualitative LEED-Untersuchungen insbesondere zur Bestimmung der Periodizität von Oberflächenstrukturen durchgeführt.

Wird bei einer Fraunhoferschen Beugungsanordnung eine einfallende ebene Elektronenwelle mit dem Wellenvektor \vec{k}_0 an einem ebenen streng periodischen Atomgitter $\vec{R}_i = m_1\vec{a}_1 + m_2\vec{a}_2$ mit den Translationsvektoren \vec{a}_1 und \vec{a}_2 elastisch gebeugt, so treten bei Erfüllung der Laue-Bedingungen:

$$\begin{aligned}(\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot \vec{a}_1 &= 2\pi \cdot h_1 \\(\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot \vec{a}_2 &= 2\pi \cdot h_2\end{aligned}\tag{2.2}$$

Beugungsreflexe in Richtung der auslaufenden Elektronenwellen mit dem Wellenvektor \vec{k} auf. Stellt man den Streuvektor $\vec{K} = \vec{k} - \vec{k}_0$ als Linearkombination aus den Vektoren \vec{b}_1 und \vec{b}_2 mit den Koeffizienten h_1 und h_2 dar, so ergibt sich aus den Laue-Bedingungen die Definitionsgleichung für das reziproke Gitter:

$$\vec{b}_i = 2\pi \cdot \frac{\vec{a}_i \cdot \vec{a}_j^2 - \vec{a}_j \cdot (\vec{a}_i \cdot \vec{a}_j)}{\vec{a}_i \cdot \vec{a}_j - (\vec{a}_i \cdot \vec{a}_j)^2}\tag{2.3}$$

mit den Indizes $i \neq j=1;2$. Da wegen der geringen Eindringtiefe der Elektronen ($\sim 5\text{\AA}$) senkrecht zur Oberfläche keine Periodizität vorliegt, folgen für diese Raumrichtung keine diskreten Beugungsbedingungen, so dass das reziproke Gitter einer idealen periodischen Oberfläche durch Stangen wiederzugeben ist. Abb. 2.3 zeigt schematisch ein solches reziprokes Gitter und die darauf aufbauende Ewaldkonstruktion. Die Schnittpunkte der Ewaldkugel (Radius $k_0=2\pi/\lambda$) mit den Stangen des reziproken Gitters geben bezogen auf den Kugelsprung die Richtungen der auslaufenden Elektronenwellen an. Das so entstehende Beugungsbild entspricht der sphärischen Projektion des reziproken Gitters. Ein eindeutiger Rückschluss vom reziproken Gitter auf die Realraum-Rekonstruktion der Oberfläche kann wegen der im Beugungsbild nicht enthaltenen Phasenbeziehung der gebeugten Wellen nicht gezogen werden. Die Periodizität der Überstrukturen, d.h. die Anordnung identischer Einheiten in Bezug auf die unrekonstruierte Substratoberfläche, ist dagegen unmittelbar ersichtlich.

Für eine LEED-basierte Bestimmung der Anordnung der Atome in der Einheitszelle (I-V-Analyse) muss die Intensität der auftretenden Reflexe bestimmt und mit berechneten Intensitäten vorgeschlagener Oberflächenrekonstruktionen verglichen werden. Obwohl die

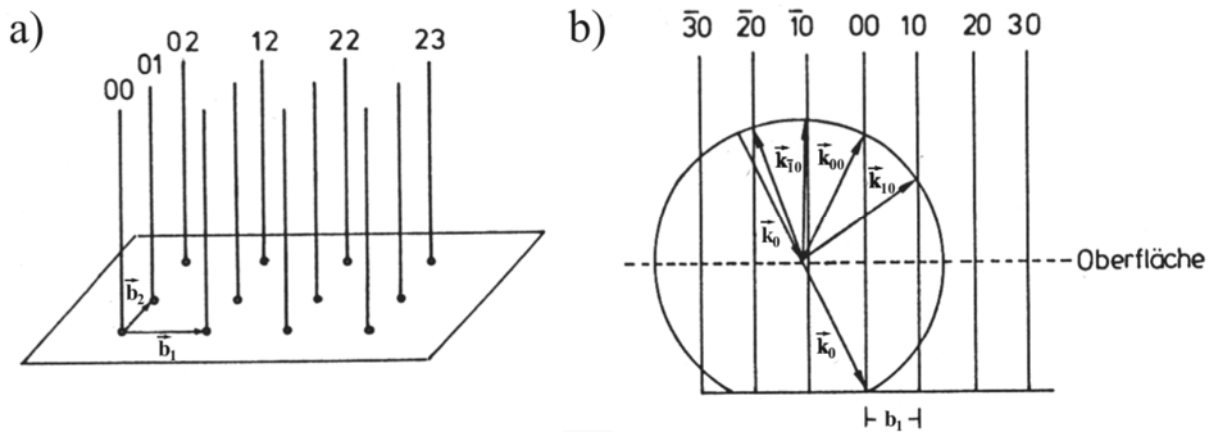


Abb. 2.3: reziproker Raum einer streng periodischen Oberfläche mit den reziproken Gittervektoren \vec{b}_i , Ewaldkonstruktion mit einer Reihe der in a) gezeigten Stangen, aus [HG94]

LEED-I-V-Analyse eine anerkannte und erfolgreiche Methode zur Untersuchung auch komplexerer Oberflächenrekonstruktionen ist, zeigen sich methodische Nachteile. Zum einen ist der für eine solche iterative Strukturanpassung erforderliche mathematische und rechentechnische Aufwand wegen der notwendigen Einbeziehung von Mehrfachstreu Prozessen (dynamische LEED-Theorie) erheblich. Zum anderen lässt die Vielzahl an geometrischen und dynamischen Parametern, insbesondere für Rekonstruktionen mit großen Einheitszellen, nur die Simulation einer vergleichsweise kleinen Anzahl in Frage kommender Strukturen zu. Weiterhin zeigt sich aufgrund der senkrecht zur Oberfläche stehenden Beugungsanordnung eine weitaus geringere Empfindlichkeit der Reflexintensitäten in Bezug auf laterale Änderungen der Atompositionen als bei entsprechenden vertikalen Änderungen. Durch zusätzliche Untersuchungen mittels Ionenstrahltriangulation können insbesondere periodische in-plane Atompositionen der obersten atomaren Lage sehr genau festgelegt werden. Die auf diese Weise gewonnenen Realrauminformationen schränken den Parameterraum für quantitative LEED-Strukturanalysen erheblich ein. Im Rahmen dieser Arbeit wird gezeigt, dass die Kombination beider Messmethoden einen Zugang zur Analyse von Strukturen mit sehr großen Einheitszellen eröffnet.

2.3 Auger-Elektronen-Spektroskopie (AES)

Heteroepitaktisches Wachstum ist vielfach mit Durchmischungs- und Segregationseffekten verbunden, so dass für die Charakterisierung der aufgewachsenen Metallfilme über die Strukturanalyse hinaus auch die Untersuchung der chemischen Zusammensetzung unerlässlich ist. Mit

Hilfe der Augerelektronenspektroskopie (AES) lassen sich durch die Energieanalyse von elektronen- oder protoneninduzierten Sekundärelektronen Informationen über die stöchiometrische Zusammensetzung der Oberfläche gewinnen [AR89]. Der dieser Messmethode zugrunde liegende Augerprozess, hier am Beispiel des $KL_{2,3}L_{2,3}$ -Übergangs, ist in Abb. 2.4 illustriert. Der Einfall von Primärteilchen (Elektronen oder Protonen) mit Energien im keV-Bereich führt zur Innerschalenionisation von Targetatomen. Das entstandene Rumpfniveauloch wird aufgrund der notwendigen energetischen Relaxation von einem Elektron aus einer weiter außen gelegenen Schale aufgefüllt. Die bei dieser Abregung freiwerdende Energie wird entweder als charakteristische Röntgenstrahlung abgegeben (Röntgenfluoreszenz) oder strahlungslos auf ein weiteres, schwach gebundenes Elektron übertragen (Augerprozess). Die kinetische Energie dieses emittierten Augerelektrons ist elementspezifisch, da sie unmittelbar von den am Übergang beteiligten Orbitalenergien abhängt. Mit Bezug auf Abb. 2.4 ergibt sich die kinetische Energie eines $KL_1L_{2,3}$ -Augerelektrons zu:

$$E_{kin} = E(K) - E(L_1) - E(L_{2,3}) - \Phi_A + \text{„Locheffekt“} \quad (2.2)$$

Wobei $E(K)$, $E(L_1)$ und $E(L_{2,3})$ die Bindungsenergien der Elektronen in den Schalen K, L_1 , $L_{2,3}$ sind und Φ_A die festkörperspezifische Austrittsarbeit ist. Die bei Einstrahlung von Elektronen auf die Atomsorte i detektierbare Elektronenintensität des Augerüberganges jkl (für den KLL-Übergang: $j=K$ und $k=l=L$) wird im Wesentlichen durch vier Faktoren bestimmt [GD86]:

$$I_{ijkl} \propto W_{ijkl} \sigma_{ij}(E_0) R(\alpha) \lambda_i(E, Z) \quad (2.3)$$

Abgesehen von der sich aus den einzelnen Übergangswahrscheinlichkeiten der beteiligten Elektronenzustände jkl zusammensetzenden Wahrscheinlichkeit für den Augerübergang W_{ijkl} und dem einfallswinkelabhängigen Rückstrefaktor $R(\alpha)$ ist die Intensität der Augerelektronen abhängig vom Ionisierungsquerschnitt σ_{ij} und der Austrittstiefe λ_i eines Elektrons mit der Energie E_{ijkl} . Abb. 2.4 rechts zeigt den typischen Verlauf und die Größenordnung des Ionisierungsquerschnitts als Funktion der Primärenergie E_0 der einfallenden Elektronen. Beginnend mit der Ionisierungsenergie E_j des entsprechenden Elektronenzustandes j steigt σ_{ij} bei Erhöhung der Primärenergie steil an, durchläuft bei $E_0/E_j \approx 2-3$ ein Maximum und fällt langsam wieder ab.

Dem entsprechend und unter Berücksichtigung von experimentellen Praktikabilitätsbedingungen (Fokussierbarkeit des Primärstrahls etc.) wurde in dieser Arbeit für die elektroneninduzierte Anregung der niederenergetischen MNN-Augerlinien (50 eV-60 eV) eine Primärenergie von 2.5 keV und für die Anregung der höherenergetischen LMM-Linien (600-1000 eV) ein E_0 von 4.0 keV gewählt.

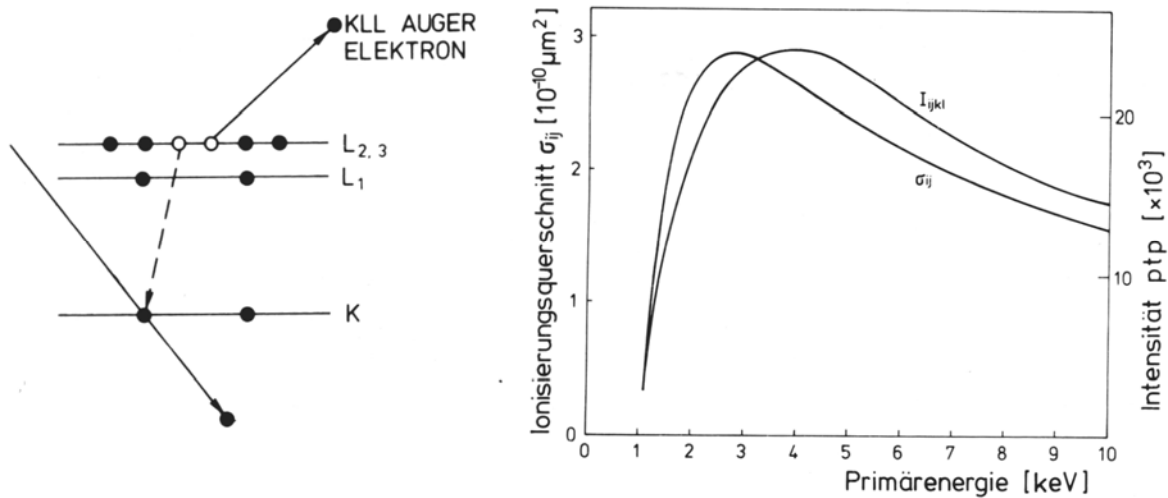


Abb. 2.4 links: Emission eines $KL_{2,3}L_{2,3}$ Augerelektrons nach erfolgter Stoßionisation der K-Schale des Atoms rechts: Verlauf des Ionisationsquerschnitts σ_{ij} (nach [WT56], [PO76]) und der experimentellen Cu-LMM(920eV)-Intensität (I_{ijkl}) in Abhängigkeit von der Primärenergie der eingestrahnten Elektronen (Einfallswinkel $\alpha=30^\circ$ in Bezug auf die Oberflächennormale), aus [GD86]

Die Austrittstiefe λ_i ist diejenige Weglänge im Material vorgegebener Zusammensetzung, nach deren Durchlaufen ein Elektron der Energie E_{ijkl} im Mittel einen elastischen Stoß erfährt. Nach Abgabe eines Energiebetrages ΔE hat ein solches Elektron nicht mehr die charakterisierende Energie E_{ijkl} des atomaren Emissionsprozesses und trägt daher nicht mehr zum Augersignal im Spektrum bei. Die Absorption der Augerelektronen im Material kann durch eine Exponentialfunktion beschrieben werden mit $1/\lambda_i$ als Absorptionskoeffizient. Für die in dieser Arbeit betrachteten Metalle Cu, Fe und Mn liegen die Austrittstiefen für die MNN-Augerenergien im Bereich von 4-5 Å und für die höherenergetischen Linien liegt λ_i zwischen 10 Å und 15 Å. Demzufolge ist die Erstellung eines lagen aufgelösten chemischen Tiefenprofils der heteroepitaktischen Schichten allein auf der Basis elektroneninduzierter Augersignale nicht realisierbar. Streifend einfallende 25 keV-Protonen erreichen bei planarer Oberflächengitterführung einen minimalen Abstand zur obersten Atomlage von $z_{\min} \approx 0.5$ Å, dieser liegt im Bereich des Bohrschen adiabatischen Abstandes für core-hole Anregung der Cu $M_{2,3}$ -Schale $d_{ad} = 0.5$ Å, was die Erzeugung von $M_{2,3}VV$ Augerelektronen durch spekulär reflektierte Protonen ermöglicht [PL93]. Die Anregungstiefe λ solcher protoneninduzierter Augerprozesse kann in Abhängigkeit von der gewählten Streugeometrie unterhalb des vertikalen interatomaren Abstandes liegen, so dass die Analyse dieser Augerlinien unmittelbaren Aufschluss über die chemische Zusammensetzung der obersten atomaren Lage gibt. Unter Ausnutzung dieser verschiedenen Informationstiefen der elektroneninduzierten MVV- und LVV- sowie der protoneninduzierten MVV-Augerintensitäten kann für die einzelnen heteroepitaktischen Systeme, d.h. Fe, Mn auf Cu(001), ein lagenweise aufgelöstes Konzentrationsprofil erstellt werden.

2.4 Magneto-Optischer Kerr-Effekt (MOKE)

Die langreichweitige magnetische Ordnung der präparierten ultradünnen 3d-Übergangsmetallfilme auf Cu(001) wurde sowohl über den Einfang polarisierter Elektronen bei der streifenden He-Streuung als auch über den Magnetooptischen Kerr-Effekt untersucht. Als

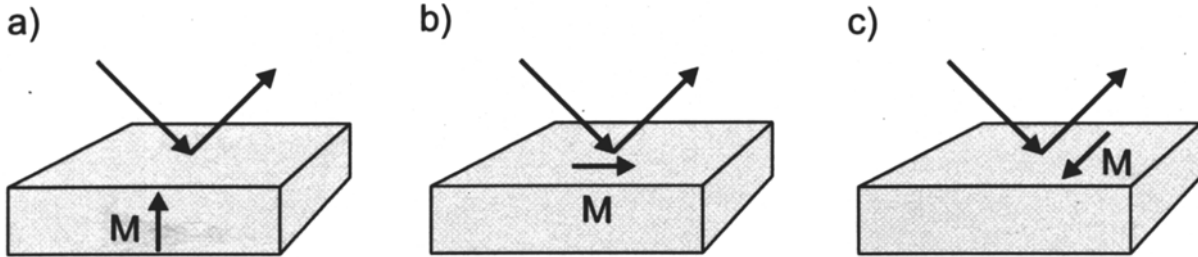


Abb. 2.5: Schematische Darstellung der drei Kerr-Geometrien: a) polarer - b) longitudinaler- und c) transversaler Kerr-Effekt

Kerr-Effekt wird die Drehung der Polarisationssebene eines Lichtstrahls bei der Reflexion an einer magnetisierten Metalloberfläche bezeichnet. Beim Magnetooptischen Kerr-Effekt wird je nach Richtung des Magnetfeldes zur Einfallsebene des Lichtes zwischen polarem, longitudinalem und transversalem Kerr-Effekt unterschieden (Abb. 2.5). Bei der Ausgangspolarisation des Lichtes wird weiterhin zwischen s- und p-Polarisation, also Linearpolarisation senkrecht bzw. parallel zur Einfallsebene, unterschieden. Nach der Reflexion an der Probe ist das Licht im Allgemeinen elliptisch polarisiert, wobei die große Halbachse der Polarisationsellipse um den Winkel θ_K (Kerr-Drehung) gegenüber der linearen Ausgangspolarisation gedreht ist (Abb. 2.6). Als komplexer Kerr-Winkel wird

$$\phi_K = \theta_K + i\gamma_K \quad (2.4)$$

mit der Elliptizität des reflektierten Lichtes:

$$\gamma_K = \arctan(b/a) \quad (2.5)$$

definiert.

Die physikalische Grundlage aller magnetooptischen Effekte ist eine Magnetisierungsabhängigkeit des Dielektrizitätstensors:

$$\hat{\epsilon} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} 1 & iQ_z & -iQ_y \\ -iQ_z & 1 & iQ_x \\ iQ_y & -iQ_x & 1 \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

Im Gegensatz zu optisch isotropen Materialien besitzt der Dielektrizitätstensor magnetooptisch aktiver Materialien oberflächenmagnetisierungsabhängige Nichtdiagonalelemente. Diese von-

einander unabhängigen Komponenten des magnetooptischen Kopplungsvektors $\vec{Q} = (Q_x, Q_y, Q_z)$ hängen von der Wellenlänge des verwendeten Lichtes, von der Magnetisierung der Oberfläche sowie vom Material selbst ab.

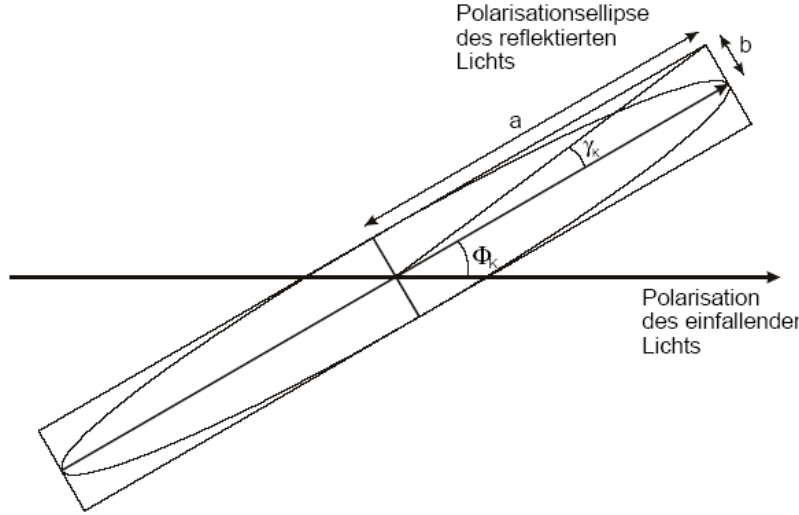


Abb. 2.6: Polarisationsellipse beim Kerr-Effekt

Der aus dem dielektrischen Tensor abgeleitete Brechungsindex der Oberflächen unterscheidet sich dementsprechend für den rechts- bzw. linkszirkularen Anteil des eingestrahnten Lichtes gemäß:

$$n_{\pm} = n_0 \left(1 \pm \frac{1}{2} \vec{Q} \cdot \vec{e}_k \right) \quad (2.7)$$

Dabei bezeichnet n_0 den Brechungsindex des nicht magnetisierten Materials und \vec{e}_k den Einheitsvektor in Richtung der Lichtausbreitung. Basierend auf den Fresnel-Gleichungen ergeben sich so die Amplitude und Phasenlage des reflektierten Strahls sowie Ausdrücke für die Kerr-Rotation und die Kerr-Elliptizität.

Eine quantitative Korrelation von Kerr-Drehung und Probenmagnetisierung konnte mit den gängigen Modellvorstellungen bisher nicht erzielt werden. Trotzdem können wichtige magnetische Charakterisierungsgrößen aus MOKE- Hysteresemessungen gewonnen werden.

Wegen der hohen Eindringtiefe des Lichts ($\sim 100 \text{ \AA}$) geben MOKE-Messungen das über alle atomaren Filmlagen gemittelte magnetische Verhalten ultradünner Schichten wieder. Im Gegensatz dazu kann mit Hilfe des Einfanges polarisierter Elektronen bei der streifenden He-Streuung der Magnetismus der obersten atomaren Lage untersucht werden.

2.5 Einfang polarisierter Elektronen (EC)

Bei der Oberflächenstreuung schneller Ionen finden in Oberflächennähe durch Verringerung der Projektil-Oberflächen-Potentialbarriere elektronische Austauschprozesse statt. Unterschieden wird hierbei zwischen der resonanten Neutralisation (RN) bzw. Ionisation (RI) als Einelektronenprozess und der Auger-Neutralisation (AN) bzw. Auger-Abregung (AD) als Zweielektronenprozesse. Die resonante Neutralisation (RN) führt zur Besetzung angeregter Terme des Projektils mit Elektronen des Valenzbandes, wobei im einlaufenden Teil der Projektiltrajektorie das eingefangene Elektron durch resonante Ionisation wieder an den Festkörper abgegeben wird. Voraussetzung ist, abgesehen von den Übergangswahrscheinlichkeiten, eine im Vergleich zur unmittelbaren Oberflächenwechselwirkungszeit ($\sim f_s$) hohe Lebensdauer der angeregten Zustände (für HeI $1s2s^3S-1s3p^3P$: 89 ns). In unmittelbarer Nähe der Oberfläche existieren wegen des starken Überlapps der beteiligten Wellenfunktionen hohe Ion-Metall Übergangsraten die aber mit wachsendem Abstand von der Oberfläche, d.h. im Bereich der auslaufenden Trajektorie, exponentiell abnehmen. Bei genügend großem Abstand wird der momentane Ladungszustand des Projektils eingefroren.

Die Helizität des bei der energetischen Relaxation eines so formierten angeregten Projektilatoms emittierten Photons enthält sowohl Informationen über den während des Streuprozesses auf das Projektil übertragenen Bahndrehimpuls \vec{L} als auch über den Spinzustand des eingefangenen Elektrons. Die Analyse des Fluoreszenzlichtes gestattet Rückschlüsse auf die unterschiedlichen Zustandsdichten von Majoritäts (spin-up)- und Minoritätselektronen (spin-down) und dementsprechend auf die langreichweitige magnetische Ordnung der Metalloberfläche.

Im Ruhesystem des an der Oberfläche gestreuten Ions wird die isotrope Impulsverteilung der besetzten Metallzustände (Fermi-Dirac-Verteilung) um die vom Projektil eingebrachte Impulskomponente \vec{Q} verschoben (Doppler-Fermi-Dirac-Verteilung). Diese zusätzliche, antiparallel zur Strahlrichtung orientierte Impulskomponente der Metallelektronen überträgt beim Einfang des Elektrons einen Bahndrehimpuls \vec{L} . Durch die beim Streuprozess verletzte Zylindersymmetrie ergibt sich geometrisch eine Vorzugsrichtung für die Ausrichtung der Drehimpulsvektoren senkrecht zur Streuebene (Vektorpolarisation) mit der Folge, dass die auf diese Quantisierungsachse (hier z-Achse) bezogenen magnetischen Subzustände M_L unterschiedlichen Überlapp mit besetzten Metallzuständen (Fermikugel) und demzufolge nach dem Einfang anisotrope Besetzungszahlen aufweisen: $\sigma_{L,M_L} \neq \sigma_{L,-M_L}$. Wenn die Oberfläche zusätzlich eine langreichweitige magnetische Ordnung mit einer Magnetisierungskomponente entlang der Quantisierungsachse (senkrecht zur Streuebene) aufweist, führt dies zu einer Orientierung der

Spins $\langle S_z \rangle \neq 0$ für Multipllett-Zustände $S \neq 0$. Für eine Komponente der Magnetisierung $M_z > 0$ ist die Orientierung des Spins $\langle S_z \rangle < 0$, wenn vornehmlich Majoritäts-Elektronen eingefangen werden. Dann ist die Orientierung des Gesamtdrehimpulses $\langle J_z \rangle = \langle L_z \rangle + \langle S_z \rangle$ (Russell-Saunders-Kopplung) kleiner als bei einer nichtmagnetischen Oberfläche. Das unter Zerfall der angeregten Zustände mit $\langle L_z \rangle \neq 0$ parallel zur Quantisierungsachse ausgestrahlte Fluoreszenzlicht ist entsprechend zirkular polarisiert. Der Grad der Zirkularpolarisation wird durch den experimentell zugänglichen reduzierten Stokes-Parameter S/I beschrieben:

$$\frac{S}{I} = \frac{b_{10}P_L + b_{01}P_S}{1 + b_{11}P_LP_S} = \frac{I(\sigma^-) - I(\sigma^+)}{I(\sigma^-) + I(\sigma^+)} \quad (2.9)$$

und ist sowohl von der Bahn- ($P_L = \langle L_z \rangle / L$) als auch von der Spinpolarisation ($P_S = \langle S_z \rangle / S$) abhängig. Die Koeffizienten b_{ij} sind für den atomaren Übergang spezifisch und können für verschiedene Multipletts unterschiedlicher Projektile aus [WI92] entnommen werden. Für den in dieser Arbeit genutzten Übergang HeI $2s^3S-3p^3P$ gilt $b_{10}=b_{01}=-0.750$ und $b_{11}=0.167$. Da bei Umkehrung der Magnetisierung das Vorzeichen von P_S invertiert, ohne P_L zu beeinflussen, kann in einer zweiten Polarisationsmessung

$$\frac{\bar{S}}{I} = \frac{b_{10}P_L - b_{01}P_S}{1 - b_{11}P_LP_S} \quad (2.10)$$

ermittelt werden. Die Gleichungen (2.9) und (2.10) gestatten die Separation der Bahn- und Spinpolarisation:

$$P_L = \frac{b_{10}b_{01} + b_{11}\frac{\bar{S}}{I}\frac{S}{I} - \sqrt{\left(b_{10}b_{01} - b_{11}\left[\frac{\bar{S}}{I}\right]^2\right)\left(b_{10}b_{01} - b_{11}\left[\frac{S}{I}\right]^2\right)}}{b_{10}b_{11}\left(\frac{\bar{S}}{I} + \frac{S}{I}\right)} \quad (2.11)$$

$$P_S = \frac{-b_{10}b_{01} + b_{11}\frac{\bar{S}}{I}\frac{S}{I} + \sqrt{\left(b_{10}b_{01} - b_{11}\left[\frac{\bar{S}}{I}\right]^2\right)\left(b_{10}b_{01} - b_{11}\left[\frac{S}{I}\right]^2\right)}}{b_{10}b_{11}\left(\frac{\bar{S}}{I} - \frac{S}{I}\right)} \quad (2.12)$$

Durch Änderung des Detektionswinkels in Bezug zur angelegten Magnetfeldrichtung kann die räumliche Spinorientierung an der Probenoberfläche untersucht werden, d.h. durch die Drehung ändert sich der auf die Detektionsachse projizierte Anteil der Vektorpolarisation. Bisherige

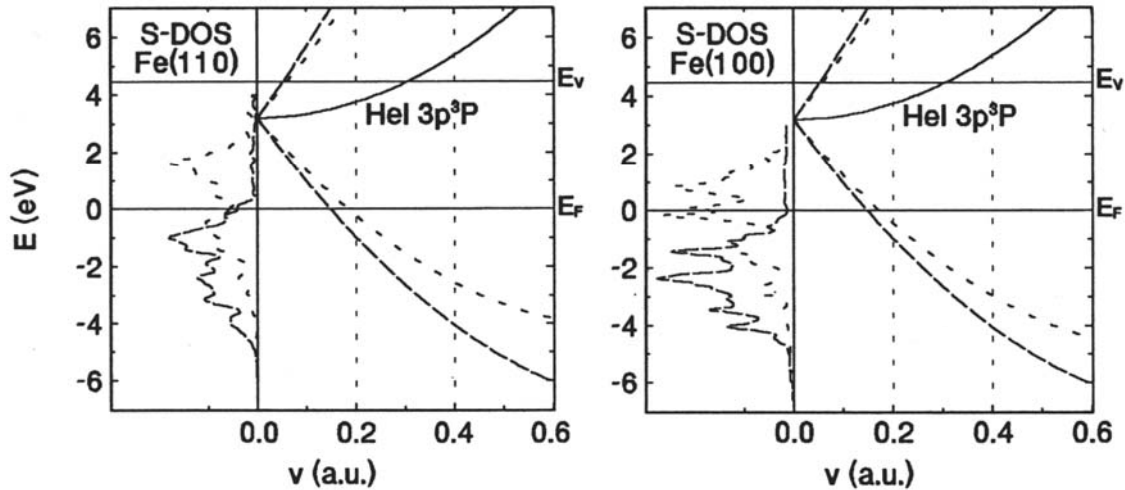


Abb. 2.7: energetische Verschiebung und Aufspaltung des $\text{He}3p^3\text{P}$ -Zustandes mit endlicher Parallelgeschwindigkeit im Abstand z_s vor einer Fe(110)- bzw. Fe(100)-Oberfläche (Spin: – up, -- down), aus [IG01]

Fluoreszenzlichtanalysen (z.B.: [LO97], [PI98], [NS91]) an magnetisierten Oberflächen bestätigen die Korrelation zwischen beobachteter Spinpolarisation P_S und dem Spin-Anteil der Magnetisierung M_Z an der Oberfläche. Jedoch zeigen Untersuchungen zur Abhängigkeit der Spinpolarisation von der Projektilgeschwindigkeit [LO97] die Grenzen einer einfachen mathematischen Behandlung des Einfangprozesses auf. Für eine quantitativere Beschreibung muss insbesondere die reale Bandstruktur der Metalloberflächen mit berücksichtigt werden. Abb. 2.7 verdeutlicht anhand der unterschiedlichen spinabhängigen Bandstrukturen der magnetisierten Fe(110) bzw. Fe(100)-Oberfläche die Parallelgeschwindigkeitsabhängigkeit des resonanten Einfangs in den energetisch verschobenen und verbreiterten $\text{He}3p^3\text{P}$ -Zustand. Erst bei Parallelgeschwindigkeiten ab 0.5 a. u. ist nahezu die gesamte besetzte Zustandsdichte der Oberfläche in Resonanz mit dem atomaren Zustand. Aus diesem Grund wurden alle hier vorgestellten Messungen zum Einfang polarisierter Elektronen bei identischen geometrischen Streubedingungen und einer Primärgeschwindigkeit der He- Projektile von $v_0=0.50$ a. u. durchgeführt.

3 Experiment

Die hier vorgestellten Messungen wurden in einer speziell für oberflächenanalytische Untersuchungen mittels streifender Ionenstreuung konzipierten UHV-Streukammer mit Anschluss an einen 30 kV Kleinbeschleuniger durchgeführt. Sowohl die vor jeder Messung erforderliche Substratpräparation, d.h. Abtragung restgaskontaminierter Adsorbatlagen durch streifenden Ar^+ -Beschuss (Sputtern) und thermisches Ausheilen der Substratoberfläche, als auch die Wachstums- und oberflächenanalytischen Messungen (IS, IST, LEED, AES, EC, MOKE) werden in dieser Streukammer durchgeführt. In den nächsten Abschnitten wird auf die experimentelle Realisierung der in Kapitel 2 vorgestellten Untersuchungsmethoden eingegangen.

3.1 Kleinbeschleuniger und Streukammer

Die zur Substratpräparation und für die Messungen erforderlichen Ionenstrahlen werden über einen 30 kV-Kleinbeschleuniger erzeugt. Dieser besteht im Wesentlichen aus einer Kaltkathodenionenquelle (Danfysik, SO66), einem 90° -Umlenkmagneten zur Massenseparation, einer Ionenlinse und zwei elektrischen Quadrupolen zur Fokussierung und zwei Plattenkondensatoren zur horizontalen Ausrichtung des Ionenstrahles. Sowohl der Quell- als auch der Separations- und Fokussierungsbereich des Beschleunigers werden durch insgesamt drei Turbomolekularpumpen auf unter $1 \cdot 10^{-6}$ mbar evakuiert. Der entlang dieser Strecke durch Restgaswechselwirkung neutralisierte Strahlanteil (ca. 1‰ der geladenen Strahlintensität) kann durch dosierten Gaseinlass, d.h. durch Erhöhung des jeweiligen Partialdrucks (hier $p_{\text{He}} \approx 1 \cdot 10^{-5}$ mbar), auf ca. 4 % erhöht werden, so dass neutrale Strahlen (einige 10 nA/mm^2) zur Verfügung gestellt werden können. Durch einen in der zweiten Druckstufe der Streukammer positionierten Plattenkondensator kann der neutralisierte Ionenstrahlanteil separiert werden. Insbesondere magnetische Hysteresemessungen mittels Elektroneneinfang erfordern, wegen der senkrecht zur Streuebene orientierten statischen Magnetisierungsfelder (bis zu 200 Oe), den Einsatz von He-Atomstrahlen. Die UHV-Streukammer ist über zwei differentielle Druckstufen, die jeweils mit einer magnetgelagerten Turbopumpe TP340M der Fa. Leybold bestückt sind, mit dem Kleinbeschleuniger verbunden. Durch insgesamt drei vor den jeweiligen Druckstufen befindliche Blendenpaare, bestehend aus Horizontal- und Vertikalblende mit Spaltbreiten von 0.3 und 1.0 mm, wird zum einen der Druck von ca. $1 \cdot 10^{-6}$ mbar im Beschleunigerbereich auf einen Basisdruck von $5 \cdot 10^{-11}$ mbar in der Streukammer gesenkt und zum anderen der Ionenstrahl auf den

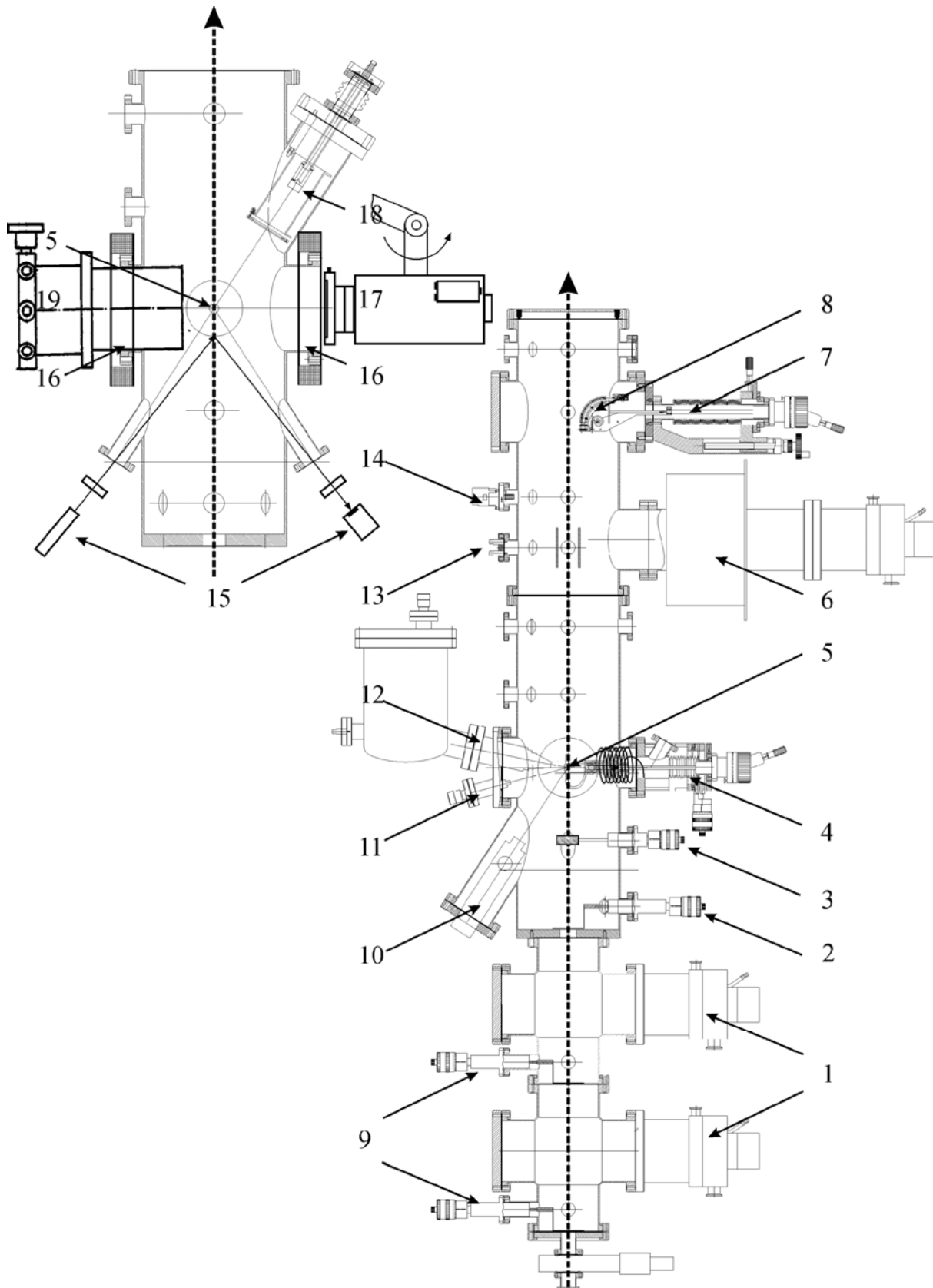


Abb. 3.1: Aufbau der Streukammer, rechts (Seitenansicht): Druckstufen mit Turbomolekularpumpen (1) und Blendenpaaren (2,9), Normierungscup (3), Präzisionsmanipulatoren Target (4)- bzw. Channeltron (7), Cu(001)-Kristall (5), Titansublimationspumpe (6), Channeltrondetektor (8), Elektronenkanone (10), Elektronenstrahlverdampfer (11), Elektronen-Energieanalysator (12), Ablenkplatten (13), Extraktor-Druckröhre (14); links (zentrale Streukammer, Aufsicht): MOKE-Aufbau (15), Magnetisierungsspulen (16), Polarisationsautomat (17), Elektronendetektor (18), SPA-LEED (19)

erforderlichen geometrischen Querschnitt begrenzt. Aus dem relativen Abstand der Blendenpaare von 367 mm und 400 mm ergibt sich bei Benutzung der kleinsten Blenden eine minimale Strahldivergenz von $\pm 0.02^\circ$. Für die meisten der hier durchgeführten Messungen wurden aus Stabilitäts- und Intensitätsgründen 1.0 mm-Vertikalblenden und 0.3 mm Horizontalblenden gewählt, einhergehend mit einer Verdopplung der horizontalen Strahldivergenz. Um Intensitätsschwankungen des Ionenstrahls während der Messungen zu korrigieren, kann nach Bedarf ein in der zweiten Druckstufe installiertes Normierungsgitter (Edelstahl, Transmission ca. 65 %) in den Strahlengang geschoben werden. Nach dem Durchlaufen der Blendenpaare erreicht der Ionenstrahl die UHV-Streukammer (Abb.3.1). In der, montiert auf einem Präzisionsmanipulator (SH2, VG), der Cu(001)-Kristall und die gesamte Oberflächenanalytik integriert ist.

Der elektrisch isoliert aufgehängte Cu(001)-Kristall (\varnothing 12mm) kann über den Manipulator in alle Raumrichtungen verschoben, azimutal um 360° gedreht und um maximal 90° polar gekippt werden. Die Ausstattung des Manipulators umfasst sowohl eine Elektronenstoßheizung als auch eine Stickstoffkühlung (EBHC, VG), so dass Substrattemperaturen im Bereich von 130 K bis 770 K zugänglich sind. Die Oberfläche des Cu-Targets wird mit Hilfe eines in den Strahlengang einblendeten Justagelasers so positioniert, dass sie zum einen innerhalb der zentralen Strahlenkegel der insgesamt vier Elektronenstrahlverdampfer (EFM3T, EFM3, Omicron) und in den Detektionsachsen des Elektronenspektrometers (CLAM2, VG) und des Elektronendetektors liegt und zum anderen vom Elektronenstrahl einer im Polarwinkel von 33° ausgerichteten Elektronenkanone (LEG32, VG) zentral getroffen wird. In zentraler Streuposition können über die Neigung des Targets polare Einfallswinkel von bis zu 2.3° realisiert werden. Die bei Betrieb der Filamente auftretenden Lichtkegel wurden zur Ausrichtung der Elektronenstrahlverdampfer mittels Accu-Port-Flansch (VF175-2, Huntington) genutzt. Die Justage der Elektronenkanone erfolgt über eine in die Streuposition geschobene Isolatorperle des Targethalters. Über das am Isolator erzeugte Fluoreszenzlicht kann die Position und die Kollimierung des Elektronenstrahls (\varnothing 2 mm) optimiert werden. Im hinteren Teil der Streukammer befindet sich, ebenfalls auf einen Präzisionsmanipulator montiert, ein vertikal verfahrbares, abgeschirmtes Channeltron (X919BL, Fa. Philips) zur Detektion gestreuter Ionen. Eine Lochblende (\varnothing 0.5 mm) vor dem Channeltron ermöglicht die Aufnahme polarer Winkelverteilung gestreuter Projektile mit einer Winkelauflösung von $\pm 0.02^\circ$.

Befindet sich das Target in Position, kann über ein Quarzfenster senkrecht zur Streuebene mit Hilfe eines schwenkbaren Polarisationsautomaten mit integriertem Photomultiplier (siehe Abschnitt 3.3) das in einen Raumwinkel von $\sim \pi$ ausgesandte Fluoreszenzlicht analysiert werden.

Zwei unter einem azimuthalen Winkel von ca. 30° zur Strahlachse ausgerichtete Fenster ermöglichen nach dem polaren Kippen des Targets um 90° ex-situ MOKE–Untersuchungen.

Weiterhin können durch Schwenken des Targets vor die Elektronenoptik des SPA-LEED-Systems (950127/23, Omicron) ex-situ LEED-Untersuchungen durchgeführt werden.

Senkrecht zur Streuebene kann in einem Bereich von ca. \varnothing 60 mm um die zentrale Streuposition ein konstantes, homogenes Magnetfeld erzeugt werden. Dabei liegt das Target in der Mitte der Zylinderachse einer quasi Helmholzanordnung, wobei die Feldspulen außerhalb der Streukammer installiert sind (weiteres siehe Kap.3.3).

Zur Kompensation des Erdmagnetfeldes ist die gesamte Streukammer von drei Helmholzspulenpaaren eingefasst, so dass auch Elektronenspektroskopie bei geringen Elektronenenergien realisierbar ist.

3.2 Aufbau und Funktionsweise des Elektronendetektors

Grundlage der in dieser Arbeit vorgestellten Variante der Ionenstrahltriangulation bildet die Anzahlstatistik der bei der Streuung einzelner Projektilen emittierten Elektronen. Zur Messung einer solchen Emissionsstatistik, d.h. der Anzahl der je Streueignis ausgelösten Elektronen, dient ein speziell für die Streukammer konzipierter Elektronendetektor (siehe Abb. 3.2 links). Die Eintrittsöffnung des zylinderförmigen Detektors (\varnothing 100 mm) ist mit einem isoliert aufgehängten, hochtransparenten Metallnetz bespannt. Um Feldemissionseffekte innerhalb des Detektors zu unterbinden, wurden alle betreffenden Bauteile (Detektorhalterung, Schirmungszylinder etc.) mechanisch poliert. Die am Target während des Streuprozesses emittierten Elektronen werden durch eine am Metallnetz angelegte Absaugspannung (+1.4 kV) in den Detektorzylinder überführt und treffen, durch eine weitere Potentialdifferenz auf 20 keV beschleunigt, auf die Sensorfläche eines Halbleiterdetektors (PIPS 55445, aktive Sensorfläche: 150 mm^2 , Canberra). Die auftreffenden Elektronen geben ihre kinetische Energie während des Eindringens in die Sperrschicht des Detektors (Sperrspannung: 60.0 V) durch Erzeugung von Elektron-Loch-Paar-Kaskaden vollständig ab, verbunden mit einer Verringerung der angelegten Sperrspannung. Die Höhe dieses messbaren Spannungspulses ist linear von der in der Sperrschicht deponierte Elektronenenergie abhängig. Da die auftreffenden Elektronen die gleiche kinetische Primärenergie einbringen, korreliert die Signalpulshöhe mit der Anzahl gleichzeitig auftreffender Elektronen. Nach erfolgter Verstärkung wird das Signal auf Erdpotential transformiert, nachverstärkt und über die Schnittstelle einer Vielkanalkarte (MCA-3/P7882, FAST Comtec) mit einem PC registriert.

Parallel dazu können die Signale über Diskriminatoren selektiv ausgewertet werden, d.h., es kann ein Signalthöhenintervall ausgewählt und integriert werden. In Kombination mit koinzi-

den Ionenflugzeitmessungen wurde dieses Detektionsschema insbesondere zur Untersuchung grundlegender elektronischer Emissionsprozesse bei der streifenden Ionenstreuung von

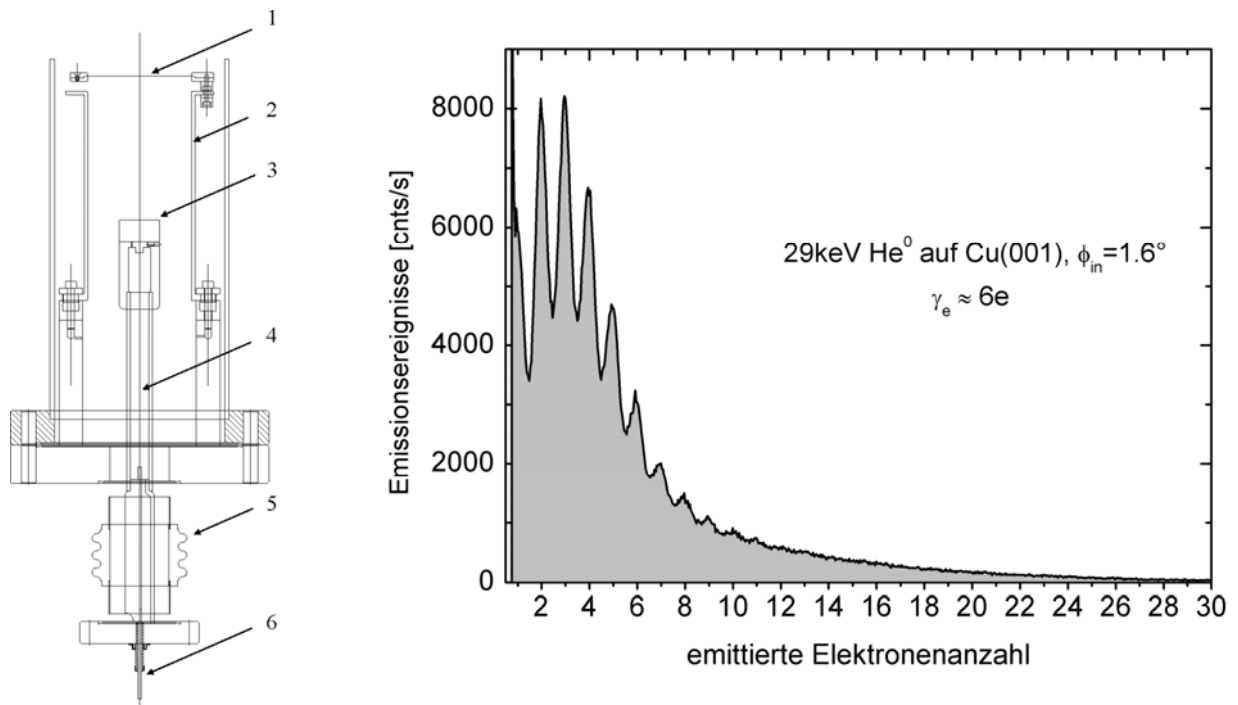


Abb. 3.2 links: Aufbau des Elektronendetektors: Absaugnetz (1), Schirmungszylinder (2), Sperrschichtdetektor (3), Halterung (4), Hochspannungsdurchführung (5), Signalausgang (6); rechts: vom Elektronendetektor registrierte Elektronenanzahlverteilung (Integrationszeit: 60 s) für die Streuung von 29 keV H^0 auf Cu(001) bei einem polaren Einfallswinkel von $\phi_{in}=1.6^\circ$, im Mittel werden 6 Elektronen je Streueignis emittiert

Aumayr *et al.* [AL90] entwickelt. Da die Probenoberfläche für die Verdampfer und Detektoren (CLAM, EC-Polarisationsautomat etc.) frei zugänglich sein muss, wurde hier der Elektronendetektor so positioniert, dass die Detektionsachse auf Targethöhe, parallel zur Targetoberfläche in einem Abstand von etwa 100 mm liegt und um 30° zur Streuebene gedreht entgegen der Strahlrichtung ausgerichtet ist (siehe Abb. 3.1). Für die optimale Überführung der in den oberen Halbraum emittierten Elektronen wurde sowohl die Probe auf *positive* Vorspannung gelegt (+11 V) als auch Magnetfelder senkrecht zur Probenoberfläche und parallel zur Detektionsachse durch äußere Feldspulen (nicht gezeigt in Abb. 3.1.) erzeugt. Das schwach attraktive Targetpotential hält die emittierten Elektronen in Targetnähe, so dass durch die Überlagerung mit dem angelegten Absaugfeld mehr austretende Elektronen in Detektorrichtung beschleunigt werden können. Die zusätzlich angelegten Magnetfelder erzeugen eine Präzessionsbewegung der Elektronen und stabilisieren so die Elektronentrajektorien in Richtung des Absaugfeldes. Innerhalb des Detektors kann zur Minimierung der Zylinderwandwechselwirkungen und zur Fokussierung einfallender Elektronen der Schirmungszylinder (Abb. 3.2: Nr.2) auf ein repulsives Potential gelegt werden. Die Höhe der zusätzlichen Magnetfelder, die Target- wie auch die Zylindervorspannung wurden im Vorfeld der Untersuchungen durch Maximierung des Emissionskoeffi-

zienten γ_e festgelegt und für alle weiteren Messungen beibehalten. Die durchschnittlichen Zeitintervalle vom Eintreffen des Projektils bis zur Emission von Elektronen liegen mit 10^{-13} s bis 10^{-11} s ([HA54], [BA76]) innerhalb des zeitlichen Auflösungsvermögens des Detektors. Um Signalüberlagerungen sowie pile-up-Effekte [KN79] zu unterbinden, wurde die Strahlintensität und die Gesamtzählrate oberhalb des Einelektronenrauschens auf ca. $1.5 \cdot 10^4$ cts/s reduziert. Einer solchen Zählrate entsprechen Ionenströme im Bereich von sub fA. Abb. 3.2 rechts zeigt eine für diese Detektionsanordnung typische Elektronenanzahlverteilung für die Streuung von 29 keV H^0 auf Cu(001) bei einem Einfallswinkel von $\phi_{in}=1.6^\circ$. Die für die kinetische Emissionsstatistik charakteristische Poissonverteilung der Elektronenanzahlen setzt sich aus äquidistanten Gaußpeaks zusammen, die jeweils den entsprechenden Emissionsanzahlen zuzuordnen sind. Die Halbwertsbreite dieser Gaußverteilungen wird maßgeblich durch den Anteil der vom Halbleiterdetektor zurückgestreuten Elektronen (ca. 15 %) bestimmt, wohingegen der Abstand der Maxima zueinander durch die angelegte Beschleunigungsspannung vorgegeben wird. Da für die in Kapitel 6 vorgestellte Messmethode der Ionenstrahltriangulation nur die Gesamtemission, weniger aber die genaue Auflösung der Emissionsanzahlen, von Interesse ist und bei Beschleunigungsspannungen von 25 kV zunehmend Feldemissionseffekte zu beobachten waren, wurde für alle hier vorgestellten Messungen eine Beschleunigungsspannung von 20 kV gewählt.

3.3 Probenmagnetisierung und magnetische Messungen

Das von angeregten He-Projektilen ausgesandte Fluoreszenzlicht wird mit einem schwenkbaren, außerhalb der UHV-Kammer befindlichen optischen Detektor analysiert. Ein Teil des senkrecht zur Streuebene abgestrahlten Lichts tritt durch ein seitlich zur Strahlachse angebrachtes Quarzfenster in den Detektor, wobei die gesamte Messanordnung gegen Streulicht von außen abgeschirmt ist. Abb. 3.3 zeigt eine Skizze des für die Polarisationsanalyse des Fluoreszenzlichtes innerhalb des Detektors genutzten Aufbaus. Der vollständige Satz der reduzierten Stokes-Parameter, bestehend aus S/I (Zirkularpolarisation), M/I (Linearpolarisation parallel zur Strahlachse, $\alpha=0^\circ$) und C/I (Linearpolarisation unter $\alpha=45^\circ$ zur Strahlachse), lässt sich unter Drehung einer $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte vor einem fixierten Linearpolarisator bestimmen [CG71]. Das aus der Detektionszone (\varnothing ca. 6 cm) einfallende Fluoreszenzlicht wird über eine Linse ($\varnothing 100$ mm, $f=200$ mm) 1:1 auf die Kathode eines auf 250 K gekühlten Photomultipliers (9635B, Dörr KG: Photokathode: $\varnothing 45$ mm, Quanteneffizienz bei $\lambda=390$ nm: ca. 26.5%) abgebildet. Dabei durchläuft das Licht eine rotierbare $\lambda/4$ -Platte (Fa. Halbo Optics, Transmission: 85%), einendichroitischen Linearpolarisator (Fa. Melles Griot, Transmission: 46%) und letztlich einen Interferenzfilter (Fa. L.O.T.-Oriel GmbH: $\lambda=391.9$ nm, Bandbreite: 9.7 nm, Transmission: 35 %). Durch Rotation der $\lambda/4$ -Platte in $\Delta\alpha=22.5^\circ$ -Schritten lässt sich der vollständige Satz

20

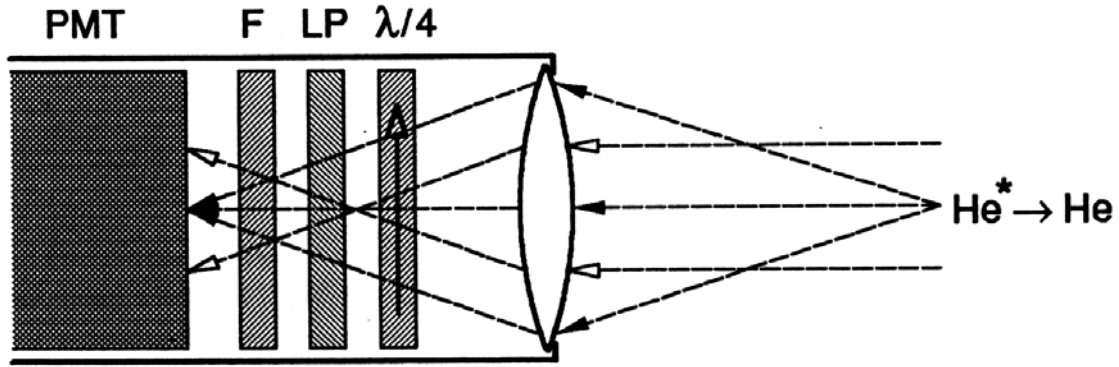


Abb. 3.3: prinzipieller Aufbau des Polarisationsautomaten: Eingangslinse, $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte, Linearpolarisator (LP), Schmalbandfilter (F), und Photomultiplier (PMT), die $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte kann über einen Schrittmotor rotiert werden, aus [IG01]

der reduzierten Stokes-Parameter bestimmen. Der Grad der Zirkularpolarisation ist über die Messung der Intensitäten bei Rotationswinkeln $\alpha=0^\circ$ und $\alpha=90^\circ$ zur Strahlachse zugänglich:

$$\frac{S}{I} = \frac{I(90^\circ) - I(0^\circ)}{I(90^\circ) + I(0^\circ)} \quad (3.1)$$

Wegen des eingeschränkten Detektionsraumwinkels und der Quanteneffizienz des Polarisationsautomaten sind für notwendige Zählraten von 800 bis 1500 cnts/s typischerweise 25 keV He^{+0} -Strahlstromdichten von 30 nA/mm^2 erforderlich. Unter Berücksichtigung des streifenden Einfalles des Ionenstrahles ($\phi_{\text{in}} = 1.6^\circ$) ergibt sich eine auf die Probenoberfläche projizierte Strahlstromdichte von ca. 0.4 nA/mm^2 . Die Dunkelzählrate des Photomultipliers konnte nach mehrtägiger Einkühlzeit bei kontinuierlich angelegter Betriebsspannung von 1.2 kV von anfänglichen 200 ± 50 cnts/s auf 60 ± 20 cnts/s reduziert werden. Für die Bestimmung der Zirkularpolarisation werden bei einer Integrationszeit von $\tau=1\text{s}$ hintereinander jeweils 11 Messpaare mit $I(0^\circ)$ und $I(90^\circ)$ registriert.

Die von einem Stellmotor angetriebene Verzögerungsplatte wird dabei um jeweils 90° in Uhrzeigerrichtung gedreht. Einschließlich der dabei entstehenden Totzeiten liegt die erforderliche Gesamtdauer einer Messung der Zirkularpolarisation bei ca. 40 s. Abb. 3.4 links zeigt zwei typische Polarisationsmessungen an einem restmagnetisierten 5 ML (Monolagen) Co-Film nach kurzzeitigem Anlegen von +100 Oe (•) bzw. -100 Oe (♦). Aus der Differenz der beiden resultierenden S/I-Werte kann die Spinpolarisation nach Gl. 2.12 berechnet werden.

Die Aufnahme von EC-Hysteresekurven erfordert die Bestimmung von S/I bei schrittweiser Änderung eines instantan angelegten in-plane Magnetisierungsfeldes. Diese Messungen müssen wegen der bei geladenen He-Strahlen auftretenden magnetfeldbedingten Änderungen der Streu

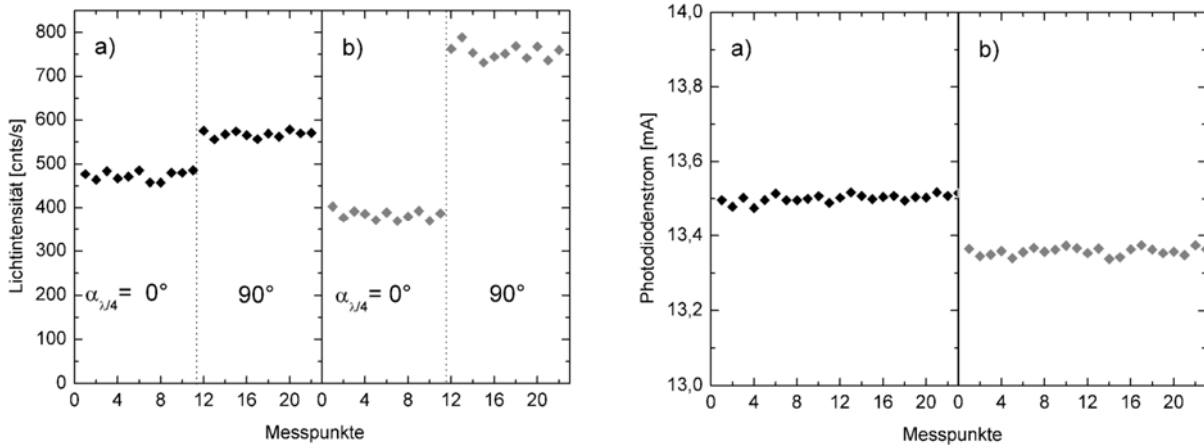


Abb. 3.4 links: (a) Elektroneneinfang-Messung an 5 ML Co/Cu(001) nach kurzzeitigem Anlegen eines Magnetisierungsfeldes von +100 Oe und (b) nach dem Ummagnetisieren mit -100 Oe, beide Messungen wurden in Remanenz, d.h. nach Abschalten der jeweiligen Magnetisierungsfelder durchgeführt; rechts: a) MOKE-Messung an 5 ML Co/Cu(001) nach kurzzeitigem Anlegen eines Magnetisierungsfeldes von +100 Oe und b) nach dem Ummagnetisieren mit -100 Oe, beide Messungen wurden in Remanenz, d.h. nach Abschalten der jeweiligen Magnetisierungsfelder durchgeführt

geometrie mit neutralen Strahlen durchgeführt werden. Um die statistisch erforderlichen Zählraten von 1000 cnts/s zu erzielen, wurde zum einen das vor der ersten Druckstufe liegende Beschleunigersegment mit He-Gas geflutet ($p_{HV}=1 \cdot 10^{-6}$ mbar auf $p_{HV}=2 \cdot 10^{-5}$ mbar) und zum anderen der Strahlquerschnitt erhöht (horizontal: ca. 5 mm, vertikal: 1 mm). Der für die Neutralisierung des geladenen Strahls notwendige He-Gaseinlass hat in der Streukammer einen Druckanstieg auf bis zu $p_{UHV}= 2 \cdot 10^{-9}$ mbar zur Folge, wobei dieser, wie Restgasanalysen zeigen, ausschließlich dem erhöhten He-Partialdruck zuzuschreiben ist. Die Aufnahme von Streuverteilungen sowie Struktur-, Auger- und EC-Untersuchungen vor, während und nach einem solchen He-Partialdruckanstieg zeigen keine Änderungen der strukturellen, chemischen oder magnetischen Eigenschaften der untersuchten Oberflächen.

Insbesondere ist die aus der EC-Hysteresekurve zu entnehmende remanente Spinpolarisation im Rahmen der Messunsicherheiten identisch mit He^+ -Messungen bei kleinerem Strahlquerschnitt und Streukammer-Basisdrücken im Bereich von $p_{UHV} \approx 5 \cdot 10^{-11}$ mbar. Für die Aufnahme einer EC-Hysteresekurve sind durchschnittlich 20-30 Messpunkte erforderlich, verbunden mit einer Messzeit von ca. 10 bis 15 min. Zwischen den einzelnen Messpunkten der Hysteresekurve wird der Strahl durch einen mechanischen Shutter ausgeblendet. Zusätzlich zu den magnetischen Messungen mittels Elektroneneinfang kann die Probe durch polares Kippen um ca. 90° in die optischen Achsen einer longitudinalen MOKE-Anordnung überführt werden. Dabei muss das Target um 5.0 cm aus der Zylinderachse der Spulenordnung herausgeschoben werden, was eine gesonderte Eichung der an dieser Position wirkenden magnetischen Feldstärken notwendig macht (siehe Abb. 3.5). Der von einem He-Ne-Laser (Fa. Melles Griot: 15 mW bei

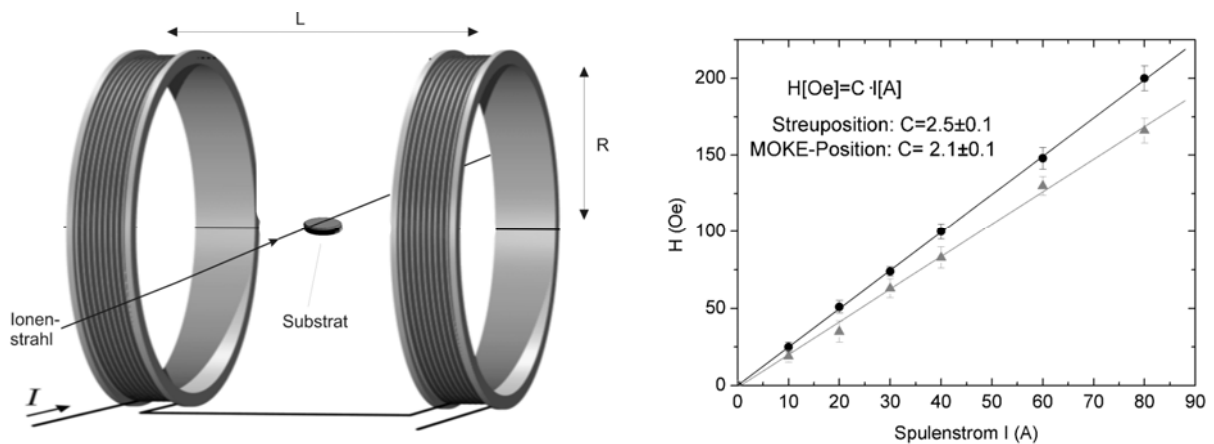


Abb. 3.5 links: Feldspulenordnung zur in-plane Magnetisierung der Probenoberfläche, die Spulen befinden sich außerhalb der UHV-Kammer: 105 Windungen, $I_{\max}=80$ A, $L=352$ mm, $R=130$ mm, $H_{\max}=200$ Oe; rechts: Stromstärke-Magnetfeldkennlinie für die entsprechende Targetstellung: Electron-capture-Position (\bullet), MOKE-Position (\blacktriangle)

$\lambda=632.8\text{nm}$) ausgehende, zu 95 % linear vorpolarisierte Lichtstrahl trifft nach dem Durchlaufen eines Nicholschen-Prismen-Polarisators (Polarisationsgrad $>99.9\%$, Melles Griot) und des Quarz-Streukammerfensters als s-Licht die spiegelreflektierende Oberfläche des Cu(001)-Kristalls. Der nach der Reflexion kaum aufgestreute Laserstrahl wird durch ein Fenster aus der Kammer herausgeführt, durchläuft den um ca. 90° zur Polarisationssebene verdrehten Analysator und fällt auf die optisch sensitive Fläche einer Photodiode. Der linear von der einfallenden Lichtintensität abhängige Diodenstrom wird als Messsignal verwendet. Um Signalanteile der am Analysator und an der Diode entstehenden Mehrfachreflexionen zu vermeiden, wurden zwei Lochblenden in die Anordnung integriert. Bei der vor jeder MOKE-Messung durchgeführten Kerr-Hub Optimierung zeigte sich ein weiter, über mehrere Winkelgrad ausgedehnter Bereich eines sich kaum ändernden maximalen Kerr-Hubsignals, was auf eine hohe Elliptizität des reflektierten Strahles (Gl. 2.5) schließen lässt. Die Intensitätsdifferenz, d.h. der Kerr-Hub Signalanteil, erreichte im optimalen Fall 1.4 % der auftreffenden Gesamtlichtintensität. Abb. 3.4 rechts zeigt eine typische MOKE-Messung an einem restmagnetisierten 5 ML (Monolagen) Co-Film nach kurzzeitigem Anlegen von +100 Oe (\bullet) bzw. -100 Oe (\blacklozenge).

Die in-plane Magnetisierung der aufgedampften 3d-Metallfilme erfolgt über luftgekühlte, außerhalb der UHV-Kammer befindliche Feldspulen in quasi Helmholzanordnung (Abb. 3.5 links), in deren Zylinderachse die Streuposition des Targets liegt. Die bei vorgegebenem Spulenstrom innerhalb der Anordnung auftretende Feldstärke wurde im Vorfeld der Untersuchungen, d.h. im belüfteten Zustand der Anlage, mit Hilfe einer Förstersonde geeicht (Abb. 3.5 rechts). Es zeigt sich, sowohl in Streu- (EC-Messungen) als auch in MOKE-Messposition, die für eine ideale Helmholzanordnung zu erwartende lineare Abhängigkeit des Magnetfeldes vom

Spulenstrom:

$$H[Oe] = 9.0 \cdot \frac{n}{R[mm]} \cdot I[A] \quad (3.2)$$

Wobei n die Anzahl der Windungen (hier: $n=105$) und R der Spulenradius (hier: $R=130$ mm) ist. Die in Abb. 3.5 durch lineares Anpassen für die entsprechende Targetposition ermittelte Eichkonstante $C_{EC} = 2.5 \pm 0.1$ ($C_{MOKE} = 2.1 \pm 0.1$) dient dem direkten Vergleich von EC- und MOKE-Hysteresemessungen. Die aus Glg. 3.2 folgenden absoluten Werte sind im Vergleich zu den gemessenen magnetischen Feldstärken mehr als doppelt so hoch (Faktor: 2.4). In erster Näherung kann dies auf den für eine ideale Helmholtzanordnung zu großen Feldspulenabstand ($L=340$ mm, $R/L=2.6$) zurückgeführt werden. Für beide Messpositionen wird durch die Spulen-anordnung ein über den gesamten Oberflächenbereich konstantes in-plane Magnetisierungsfeld erzeugt.

3.4 Das SPA-LEED System

Zur Untersuchung ioneninduzierter Elektronenbeugungserscheinungen wurde die Elektronen-optik eines konventionellen SPA-LEED Systems genutzt. Die Eintrittslinse (\varnothing 47 mm) der LEED-Einheit wurde für diese Messungen 15 mm über der in *Streuposition* befindlichen Targetoberfläche positioniert. Diese Anordnung ermöglicht sowohl einen vom SPA-LEED-Tubus unbeeinflussten spekularen Ionenstreuprozess als auch die für solche Untersuchungen notwendige raumwinkel- und energieaufgelöste Abbildung der ioneninduzierten Elektronenemission (Abb.3.6 unten). In seiner konventionellen Nutzung, insbesondere als Instrument zur quantitativen Spot-Profil-Analyse [SM87], funktioniert das SPA-LEED folgendermaßen: Der von einer in der optischen Achse des Systems liegenden Elektronenkanone ausgehende kollimierte, monoenergetische Elektronenstrahl durchläuft die aus drei mal acht Ablenkplatten bestehende Oktopolelektronenoptik, wird über eine Austrittslinse nachfokussiert und trifft bei inaktiver Ablenkspannung senkrecht die Probenoberfläche. Die entsprechend der Laue-Bedingungen (Gl. 2.2) gebeugten Elektronen werden nach Wiedereintritt in den Detektor mit Hilfe der steuerbaren Ablenkspannung an den Oktopolplatten über die Öffnung eines um $\alpha=4^\circ$ neben der optischen Achse positionierten Channeltrondetektors geführt (Abb. 3.6 oben). Durch einen elektrostatischen Repeller unmittelbar vor dem Channeltron werden Elektronen mit Energien kleiner als die eingeschossene Primärenergie zurückgehalten. Um ein Beugungsbild aufzunehmen, wird gleichzeitig der Einfalls- und Ausfallswinkel der Elektronen variiert, wobei der Winkel $\alpha=4^\circ$ zwischen beiden k -Vektoren (\vec{k}_i, \vec{k}_f) festgelegt ist [SP96]. Aus dieser apparaturbedingten Abhängigkeit resultiert eine für den konventionellen Gebrauch modifizierte Ewaldkonstruktion

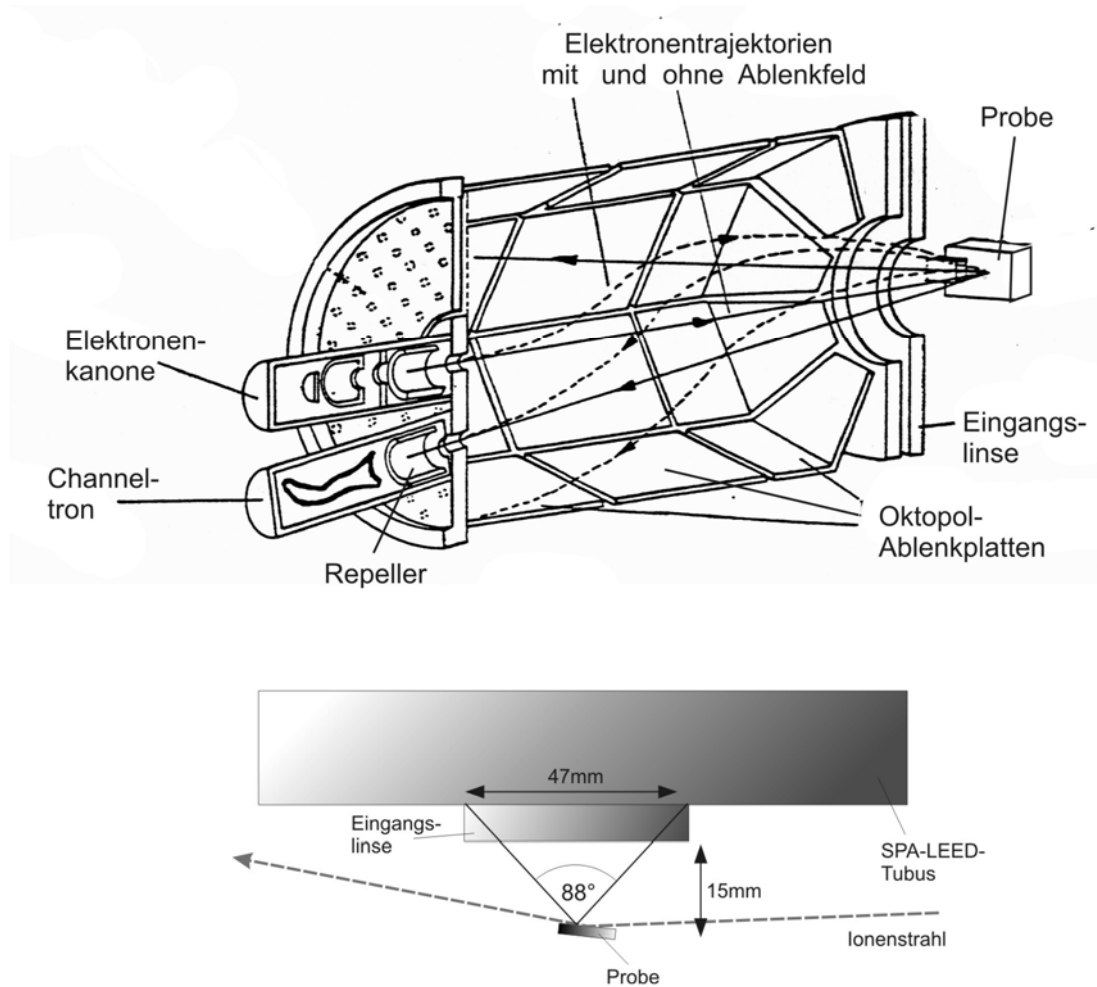


Abb. 3.6 oben: Aufbau und Funktionsweise der SPA-LEED-Einheit, nähere Erläuterungen siehe Text, aus [SP96] unten: schematischer Versuchsaufbau zur Analyse der raumwinkelaufgelösten Ioneninduzierten Elektronenemission mittels SPA-LEED-Elektronenoptik, der maximale geometrische Detektionswinkel beträgt ca. 88°

[HG94]. Im Gegensatz dazu wurde für die hier durchgeführten Untersuchungen die Elektronenemission extern durch streifend einfallende Ionen erzeugt, d.h. \vec{k}_i (Wellenvektor der durch Ionenstoß angeregten Kristallelektronen) ist im Gegensatz zu \vec{k}_f (Wellenvektor austretender gebeugter Elektronen) nicht von den Eigenschaften des SPA-LEED Systems abhängig. Während der

Messungen war die Elektronenkanone der LEED-Einheit grundsätzlich ausgeschaltet. Zur raumwinkelaufgelösten Abbildung der emittierten Elektronen diente nur der Detektionszweig des Systems, d.h. Oktopolanordnung, Repeller und Channeltron. Ein unter dem polaren Winkel φ_{out} zur optischen Achse (k_z -Achse) emittiertes Elektron (Energie: E , Impuls: \vec{k}) erfährt beim Eintritt in die Oktopolanordnung durch die angelegte Ablenkspannung:

$$dU = \sqrt{dU_x^2 + dU_y^2} \quad (3.2)$$

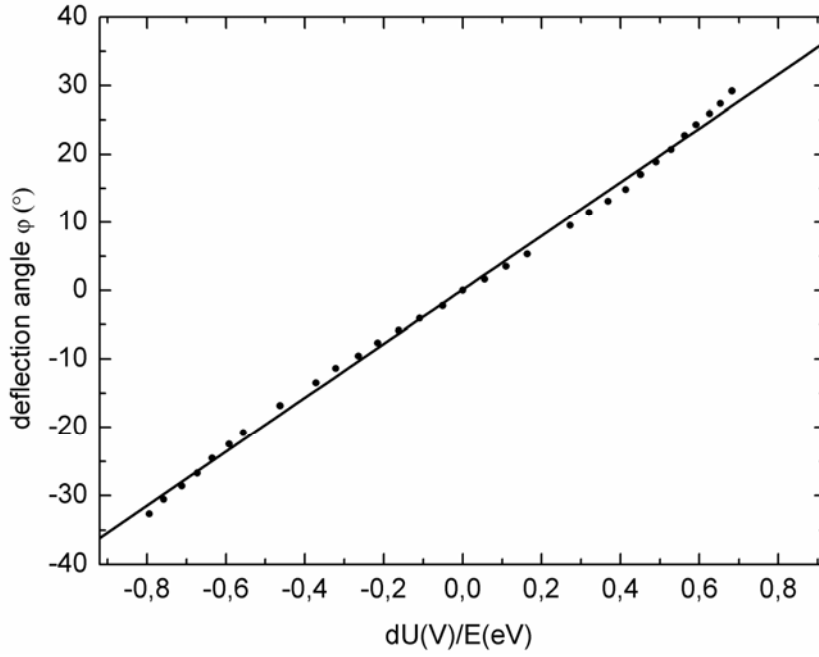


Abb. 3.7: Abhängigkeit des polaren Ablenkwinkels φ eines Elektrons mit der Energie E von der angelegtem Oktopolablenkspannung dU

eine zusätzliche Impulskomponente dk_{\parallel} , die zu einer Änderung der Ausbreitungsrichtung des Elektrons in der k_x - k_y -Ebene (Scanebene) führt. Zwischen der Änderung der Ablenkspannung dU und der daraus resultierenden Impulskomponente dk_{\parallel} gilt folgender Zusammenhang [SP96]:

$$dk_{\parallel} = const. \cdot \frac{dU}{\sqrt{E}} \quad (3.3)$$

Gl. 3.3 ermöglicht wegen $dk_{\parallel} / k = \sin \varphi$ die Berechnung des mit der Richtungsänderung dk_{\parallel} korrespondierenden polaren Ablenkwinkels φ :

$$\sin \varphi = const. \cdot \frac{dU}{E} \quad (3.4)$$

Unter der Voraussetzung monochromatischer Elektronen kann aus der zweidimensionalen Darstellung der vom Channeltron registrierten Elektronenintensität bezogen auf die Feldkomponenten der Ablenkeinheit (dU_x , dU_y) auf die Raumwinkelverteilung (φ, θ) emittierter monochromatischer Elektronen geschlossen werden. Aus der experimentell bestimmten Eichkurve $\varphi(dU)$ kann im Rahmen der benötigten Messgenauigkeit eine über den gesamten detektierten Winkelbereich $\varphi_{\max} = \pm 30(\pm 2^\circ)$ gültige lineare Korrelation (Abb. 3.7) angenähert werden.

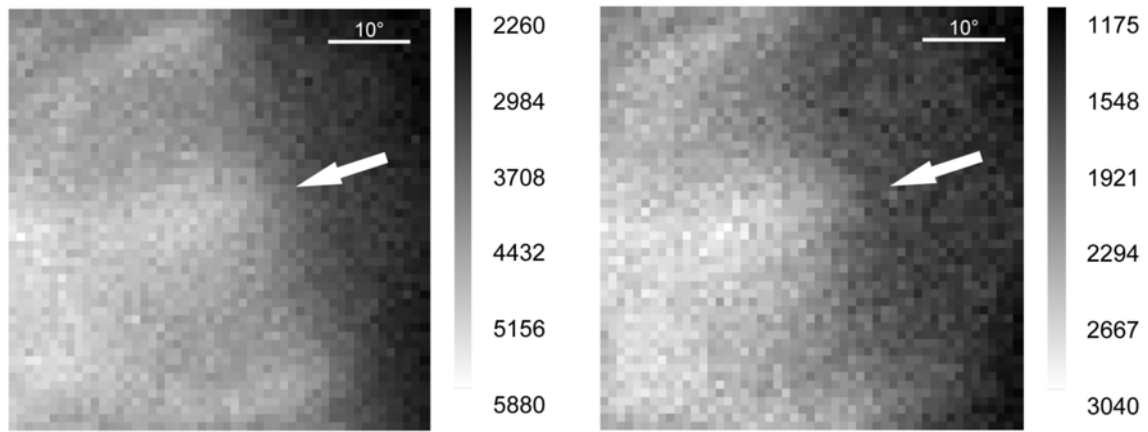


Abb. 3.8: SPA-LEED Aufnahmen der He^+ -induzierten Elektronenemission bei den Schwellenenergien $E_1=17\text{eV}$ (links) und $E_2=23\text{eV}$ (rechts), der Pfeil kennzeichnet die Ionenstrahlrichtung, die Pfeilspitze liegt senkrecht über der Oberfläche (Koordinatenursprung), zu beachten ist die angepasste Intensitätsskala

Erst bei Ablenkwinkeln $|\varphi| > 30^\circ$ führen die Kleinwinkelnäherung $\varphi \approx \sin\varphi$ und Inhomogenitäten der Ablenkfelder zu Abweichungen vom linearen Verhalten, wobei sich beide Effekte teilweise kompensieren. Um bei verschiedenen Elektronenenergien vergleichbare raumwinkelaufgelöste Emissionsmessungen zu erhalten, muss für alle Messungen durch Wahl der maximalen Ablenkspannung dU_{max} derselbe Ablenkwinkelbereich festgelegt werden. Für die hier vorgestellten Messungen gilt grundsätzlich $dU_{\text{max}}(\text{V})/E(\text{eV}) = \pm 0.75$, verbunden mit einem maximalen Ablenkwinkel von ca. $\pm 30^\circ$. Vor jeder Messreihe wurde die Oberflächennormale (Koordinatenursprung) unter Berücksichtigung der Channeltronposition (4° zur optischen Achse) und des polaren Einfallswinkels ($\phi_{\text{in}} = 1.6^\circ$) mit Hilfe der Elektronenkanone über die Position des (0,0)-Reflexes festgelegt.

Das bei der Ionenstreuung auftretende breite Energiespektrum (3 eV-200 eV) an emittierten Elektronen macht zur Untersuchung von Beugungsphänomenen eine Energieselektion im Detektionskanal erforderlich. Da das SPA-LEED nur über einen energetischen Hochpass in Form des vor dem Channeltron befindlichen Repellers verfügt, wurde die Energieauflösung durch die Differenz zweier energetisch nahe beieinanderliegender Raumwinkelverteilungen erreicht, d.h., es wurden zwei Aufnahmen bei den Schwellenenergien E_1 und $E_2 = E_1 + dE$ durchgeführt und anschließend voneinander subtrahiert, so dass die daraus resultierende Raumwinkelverteilung nur Intensitäten von Elektronen mit Energien zwischen E_1 und $E_2 = E_1 + dE$ enthält. Voraussetzung für diese Prozedur ist die weiter oben diskutierte Vergleichbarkeit der Raumwinkelverteilung bei unterschiedlichen Energien. In Abb. 3.8 sind exemplarisch die aufgenommenen He^+

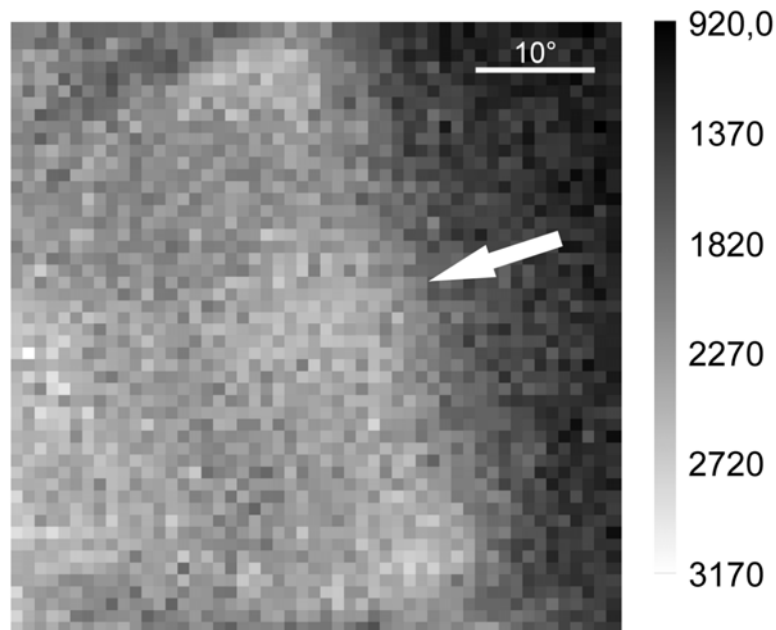


Abb. 3.9: Die aus der Subtraktion der SPA-LEED Aufnahmen in Abb. 3.8 erhaltene Raumwinkelverteilung emittierter Elektronen mit Energien von $20 \pm 3 \text{ eV}$

induzierten Raumwinkelverteilungen emittierter Elektronen oberhalb der Schwellenenergien $E_1=20 \text{ eV}$ und $E_2=23 \text{ eV}$ dargestellt. Das aus der Subtraktion beider resultierende Ergebnis zeigt Abb. 3.9. Abhängig von der gewählten Detektionsenergie ($E=15 \text{ eV}$: 60 kcts/s, $E=60 \text{ eV}$: 0.5 kcts/s) waren für energieaufgelöste Verteilungen 15-50 Einzelmessungen bei den entsprechenden Schwellenenergien notwendig. Gewählt wurde dabei eine Auflösung von 50×50 Messpunkten bei einer jeweiligen Integrationszeit von $\tau=0.05 \text{ s}$. Für die Auswertbarkeit der Messungen mussten Schwankungen des Ionenstrahls über den gesamten Messzeitraum im Bereich von $\pm 3\%$ liegen. Als Referenz wurde während der SPA-LEED Aufnahmen der unkompenzierte Targetstrom als Maß für die auftreffende Ionenanzahl mitgeschrieben und Aufnahmen mit höheren Intensitätsschwankungen verworfen.

4 Ioneninduzierte Elektronenbeugung

Bedingt durch die vielfältigen technischen Anwendungsmöglichkeiten, z.B. in Elektronenvervielfachern, in Feld Emissions Displays (FED) [LJ01] und in der Rasterelektronenmikroskopie (SEM) [CO86], entwickelte sich die Teilchen-induzierte Elektronenemission zu einem weiten Untersuchungsfeld grundlagenphysikalischer Fragestellungen (z.B.: [RB91], [HR92]). Im Kontext dieser Arbeit wird die Elektronenemission bei streifender Ionen-Oberflächenstreuung sowohl zur Überwachung des epitaktischen Filmwachstums (Kapitel 5) als auch zur Struktur- und chemischen Analyse (Kapitel 6 bzw. 7) heteroepitaktischer Dünnschicht-Metallsysteme verwendet. Eine genaue Kenntnis der zur Elektronenemission führenden Prozesse und Faktoren ist daher für die Interpretation der gewonnenen Messdaten wichtig. Aus diesem Grund wurden im Vorfeld der Dünnschichtuntersuchungen mit dem SPA-LEED energie- und raumwinkelaufgelöste Emissionsverteilungen bei der Streuung von 25-29 keV He^+ und H^+ -Ionen auf der reinen Cu(001)-Oberfläche analysiert. Der Beitrag dieser Untersuchungen zum Gesamtverständnis der ioneninduzierten Elektronenemission besteht im Nachweis und der Quantifizierung kohärent emittierter Anteile angeregter Kristallelektronen. Die beobachteten Beugungsintensitäten geben u.a. Aufschluss über den ursächlichen elektronischen Anregungsprozess innerhalb der Oberfläche.

4.1 Ioneninduzierte Elektronenanregung

Bei der Ionenstreuung wird zwischen zwei Arten zur Emission beitragender elektronischer Anregungsprozesse unterschieden: zum einen die durch die Bewegung des Projektils an der Oberfläche initiierte *kinetische Elektronenanregung* und zum anderen die *potentielle Elektronenanregung*, hervorgerufen durch den vom Projektil-Ion eingebrachten potentiellen Energiebeitrag. Für die hier verwendeten leichten Projektile (H, He) mit mittleren Primärenergien von 20-30 keV dominiert die kinetische Elektronenanregung. Dabei führt die binäre Wechselwirkung des Projektils mit Leitungsbandelektronen des Metallsubstrates zu einer dissipativen Abbremsung des Projektils, verbunden mit der Besetzung angeregter elektronischer Zustände. Im einfachsten Modell hat der harte binäre Stoß einen Übergang vom ursprünglichen Impulszustand des Elektrons \vec{k} ($k < k_f$) zum angeregten Zustand $\vec{k}' = \vec{k} + \vec{q}$ ($|\vec{k} + \vec{q}| > k_f$), bei einem Impulsübertrag \vec{q} und einer Anregungsenergie in der freien Elektronennäherung [RB91, RA80] von:

$$E_{ex} = \frac{(\vec{k} + \vec{q})^2}{2} - \frac{k^2}{2} = \vec{k}\vec{q} + \frac{q^2}{2} \quad (4.1)$$

zur Folge (siehe Abb. 4.1 links). Ausgehend von Ausgangszuständen innerhalb der Fermikugel

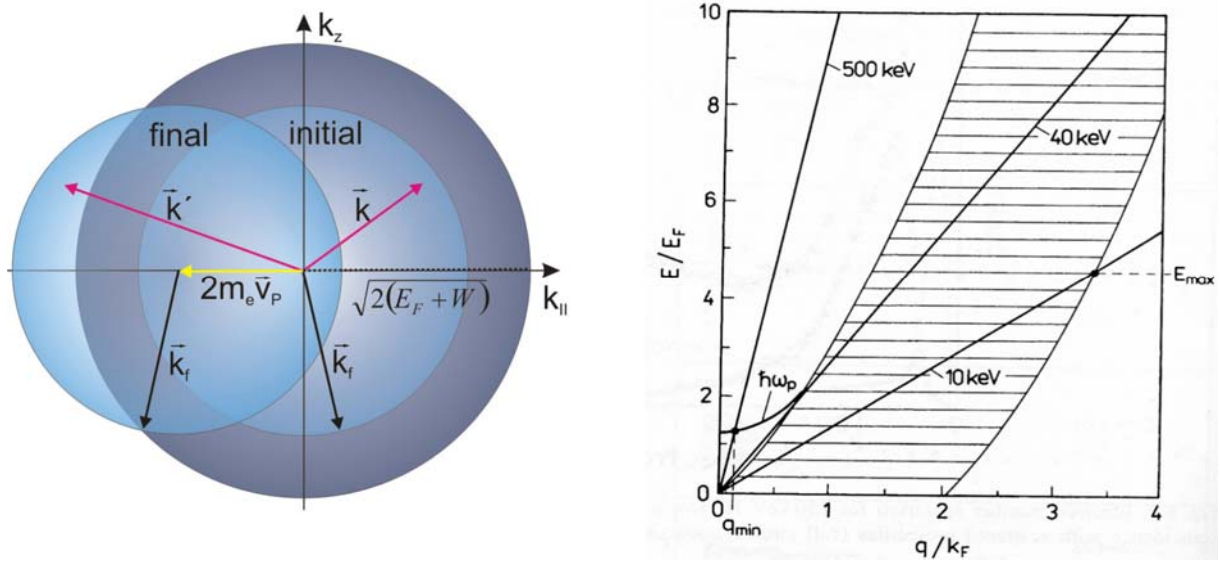


Abb. 4.1 links: kinetische Elektronenanregung im Konzept der verschobenen Fermikugeln: Der Impulsübertrag \vec{q}_0 des Ions auf ein ruhendes Elektron ($k=0$) beträgt wegen $M \gg m_e$: $\vec{q}_0 = 2m_e \vec{v}_P$. Die Impulsvektoren der Metallelektronen nach dem Stoß \vec{k}' ergeben sich aus der Spiegelung der Anfangsimpulse \vec{k} an der k_z -Achse (\parallel zur Oberflächennormalen) und Verschiebung um \vec{q}_0 . Angeregte Elektronen mit $k' > 2(E_F + W)^{1/2}$ können ins Vakuum emittiert werden, aus [WW03]. rechts: elektronisches Anregungsspektrum eines Metalls. Die gestrichelte Fläche kennzeichnet das Kontinuum an Elektron-Loch-Paar Anregungen. Die Graphen zeigen den Energietransfer E_T von Ionen mit Primärenergien von 10, 40 und 500 keV und die Plasmondispersion ($\hbar\omega_p$), aus [WI02]

mit $k \leq k_f$ führt dieser eingebrachte Energiebeitrag zu einem Kontinuum an Elektron-Loch-Paar Anregungen innerhalb der durch die Energie und Impulserhaltung vorgegebenen Grenzen: $(q/2)(q+2k_f)$ und $(q/2)(q-2k_f)$ (schraffierte Fläche in Abb. 4.1 rechts). Der Energietransfer auf das Elektron nach dem Stoß mit einem Projektil der Masse M und dem Impuls $\vec{p} = M\vec{v}_P$, beträgt:

$$E_T = \frac{\vec{p}^2 - (\vec{p} - \vec{q})^2}{2M} \approx \frac{\vec{p} \cdot \vec{q}}{M} = \vec{v}_P \cdot \vec{q} \quad (4.2)$$

Abb. 4.1 rechts zeigt die lineare Abhängigkeit des Ion-Elektron Energietransfers für unterschiedliche Projektil-Primärenergien.

Die Reflektion eines Fermielektrons mit dem Impulsvektor \vec{k}_f antiparallel zum Projektilimpuls \vec{p} hat nach Gl. 4.2 und Abb. 4.1 links den größten Energietransfer zur Folge, verbunden mit der maximalen elektronischen Anregungsenergie:

$$E_{\max}^e = m_e/2 \cdot (2v_p + v_f)^2 \quad (4.3)$$

Für 25 keV H^+ -Projekteile auf Cu(001) (Fermienergie: $E_F=7.1$ eV) ergeben sich im Rahmen

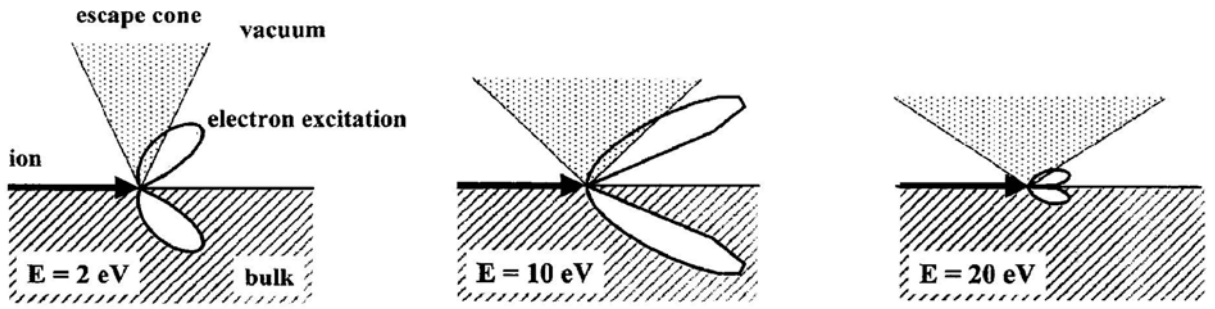


Abb. 4.2: Winkelabhängige Elektronenanregung durch Binärkollisionen von streifend einfallenden 25 keV H-Projektilen mit Leitungsbandelektronen für Elektronen mit Energien nach der Anregung von 2 eV, 10 eV und 20 eV, eingezeichnet ist auch der Austrittskonus, aus [PU03]

dieses Anregungsmodells maximale Elektronenenergien innerhalb des Kristalls von $E_{\max}^e = 101$ eV (für He: 40 eV). Aus der für ein freies Elektronengas gültigen Lindhardschen Dielektrizitätsfunktion $\varepsilon^L(q, E_r)$ kann die elektronische Anregungsfunktion $S_e(E_0, E, \cos\theta)$ berechnet werden (siehe dazu [RB91] bzw. [BS80]). Abb. 4.2 zeigt die aus der Anregungsfunktion (H^+ , $E_0=25$ keV) entnommene räumliche Winkelverteilung ionenstoßangeregter Leitungselektronen. Mit wachsender Impulskomponente breiten sich die angeregten Elektronenwellen bevorzugt in Richtung des einfallenden Projektils, d.h. parallel zur Oberfläche, aus. Ein Grossteil dieser Primärelektronen kann wegen des aus der Oberflächenpotentialbarriere:

$$V_0 = E_F + W \quad (4.4)$$

(Austrittsarbeit für Cu: $W=4.55$ eV) resultierenden Austrittskonus [RB91]:

$$\cos\alpha' < \cos\alpha_c = \sqrt{\frac{V_0}{E'}} \quad (4.5)$$

(α' ist der Winkel zwischen Oberflächennormalen und Ausbreitungsrichtung der Elektronenwelle innerhalb des Metalls, E' -Elektronenenergie innerhalb des Metalls) nicht direkt den Kristall verlassen. α_c ist dabei der maximale Emissionswinkel, für den die Normalenkomponente des Elektronenimpulses die Überwindung des Oberflächenpotentials gestattet. Der austrittsfähige Anteil primär angeregter Elektronen entspricht der Schnittfläche von Anregungs- und Austrittskonus in Abb. 4.2. Im Allgemeinen kann aus Emissionsspektren nicht unmittelbar auf den ursächlichen Anregungsprozess geschlossen werden, da Primärelektronen während ihres Transportes durch den Kristall weitere Elektron-Elektron-Stöße erleiden, so dass die Emission von Sekundärelektronenkaskaden dominiert wird. Dies führt in energieaufgelösten Spektren zu einer ausgeprägten Peakstruktur bei sehr niedrigen Energien (einige eV), gefolgt von einem monotonen exponentiellen Abklingen zu höheren Energien. Im Falle der streifenden Streuung hingegen ist der Transport der Elektronen innerhalb des Kristalls reduziert, so dass winkelaufgelöste Elektronenspektren Merkmale der primären Binärstoßanregung aufweisen [HZ94].

4.2 Plasmonanregung vs. Beugung von Blochwellen

Zusätzlich zu der im vorigen Abschnitt behandelten ioneninduzierten Elektron-Loch-Paar-Erzeugung zeigt das Anregungsschema in Abb. 4.1 rechts die für ein freies Elektronengas gültige Plasmon-Dispersionsrelation [RA80]:

$$\omega(k) \approx \sqrt{(\omega_p^2 + 3/5 v_F^2 k^2)} \quad (4.6)$$

mit der klassischen Plasmafrequenz $\omega_p = 2\sqrt{n_e e^2 / \epsilon_0 m_e}$. Die ioneninduzierte Anregung einer solchen Eigenschwingung ist allerdings nur für Plasmonimpulse mit $k < k_c$ möglich, da für größere Impulsüberträge ein effektiver Zerfall in Elektron-Loch-Paare einsetzt, wobei aus Abb. 4.1 $k_c \approx \omega_p / v_F$ abgeschätzt werden kann. Dementsprechend sind für das Erreichen der notwendigen Plasmonanregungsenergien bei kleinen Impulsüberträgen hohe kinetische Ionenprimärenergien erforderlich. Aus dem Vergleich der Plasmonenergie mit der vom Ion transferierten Energie (Gl. 4.2) folgt eine für die Plasmonanregung mindestens erforderliche Ionen-geschwindigkeit von:

$$v_c \approx \sqrt{8/5} \cdot v_F \quad (4.7)$$

Für Al zum Beispiel muss die Projektilenergie mehr als 30 keV/amu betragen.

Trotz dieser restriktiven theoretischen Voraussetzungen zeigen experimentelle Elektronenspektren weit unterhalb der Ionen-Schwellenenergie (Gl. 4.7) eine erhöhte Elektronenemission bei Elektronen-Energien von $(\omega_p - W)$, die der Anregung und dem anschließenden Zerfall von Oberflächen- und Volumen-Plasmonen zugeschrieben werden (z.B.: [BD95], [NG98]) (Abb. 4.3 links). Zur Erklärung dieses Phänomens wurde die durch schnelle Sekundärelektronen initiierte indirekte Plasmonanregung vorgeschlagen [SG00]. Eine weitere mögliche Interpretation basiert auf einer kristallgitterassistierten Ion-Plasmon-Wechselwirkung, wobei von den Kristallatomen als dritter Stoßpartner Impulsanteile übernommen werden können [SZ00].

Im Gegensatz zu diesen Erklärungsversuchen weisen in der Folgezeit durchgeführte Vergleichsuntersuchungen, insbesondere für H^+ -induzierte Elektronenspektren, deutliche Unterschiede in der Ausprägung der „Plasmonschulter“ zwischen mono- und polykristallinen Al-Oberflächen auf, d.h. der beim Al(111)-Einkristall beobachtbare „Plasmonpeak“ konnte für die polykristalline Al-Oberfläche nicht nachgewiesen werden [WE01]. Daraus folgend wurde eine zur Plasmonanregung alternative Deutung der niederenergetischen Überstruktur vorgeschlagen [NZ01]:

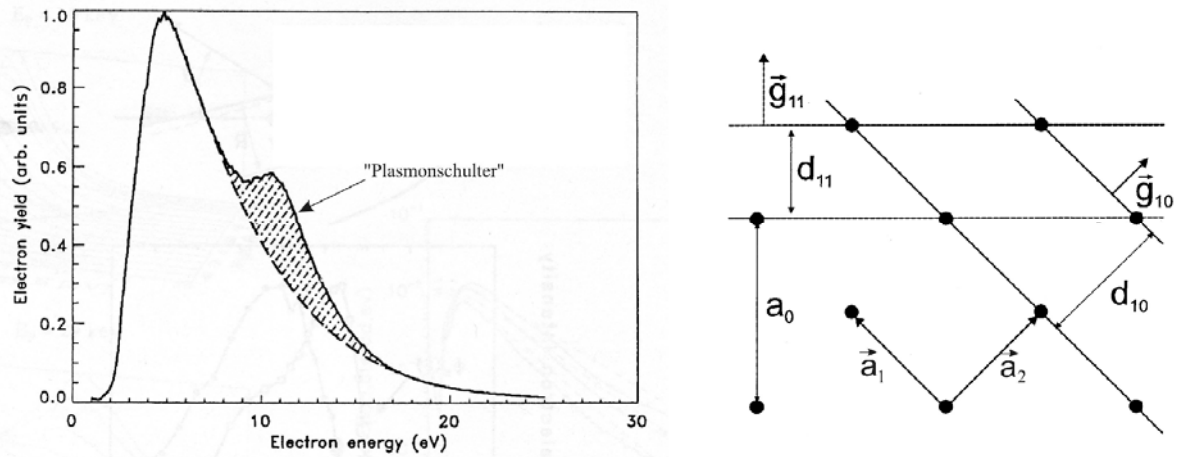


Abb. 4.3: links: senkrecht zur Oberfläche aufgenommenes Elektronenspektrum für die streifende Streuung von 4 keV Protonen auf Al(111), aus [SZ00], rechts: Das quadratische Oberflächengitter des Cu(001)-Kristalls im Realraum, eingezeichnet sind die Translationsvektoren \vec{a}_i , die Gitterkonstante a_0 , die Atomreihenabstände d_{10} und d_{11} sowie die daraus folgenden reziproken Gittervektoren \vec{g}_{10} und \vec{g}_{11}

Ein bestimmter Anteil ionenstoßangeregter Elektronen besetzt Bloch-Wellen, d.h. ebene Wellenzustände, die die zweidimensionalen Periodizitätsbedingungen der einkristallinen Oberfläche erfüllen. Die sich mit Wellenvektoren \vec{k}_{in} parallel zu niederindizierten Richtungen ausbreitenden ebenen Wellen werden an Einzelatomen der Oberfläche gestreut. Die Streuamplituden einer solchen Blochwelle weisen feste Phasenbeziehungen auf, so dass im Falle konstruktiver Überlagerung der bei der Streuung entstehenden Partialwellen ioneninduzierte LEED-Phänomene (IILEED) auftreten können.

Im Gegensatz zu den theoretischen Konzepten etablierter Beugungserscheinungen wie niederenergetische Elektronenbeugung (LEED) oder Photoelektronenbeugung (PED) existieren für die durch streifenden Ioneneinfall angeregten Elektronen kaum anwendbare theoretische Grundlagen.

Im Unterschied zu den monochromatischen Elektronen mit definierter Ausbreitungsrichtung bei LEED-Experimenten, umfasst der kinetische Anregungsprozess ein Kontinuum an Elektronenenergien mit weitgehend unbekannter Winkelverteilung. Weiterhin bleiben die genaue Entstehungstiefe von Primärelektronen und ihre Lokalisierung in Bezug auf die Gitteratome undefiniert. Erste theoretische Abschätzungen zur Energie und Winkelverteilung von gebeugten Elektronenemissionsanteilen liefert das oben beschriebene Modell von Niehaus et. al. [NZ01]:

Abb. 4.3 rechts zeigt das quadratische Gitter der Cu(001)-Oberfläche (Gitterkonstante: $a_0=3.61 \text{ \AA}$) mit den Einheitsvektoren für die Translation $\vec{a}_1 = a_0/\sqrt{2} \cdot (1,0)$ und $\vec{a}_2 = a_0/\sqrt{2} \cdot (0,1)$ und die sich aus dem Abstand der atomaren Ketten $d_{10} = |\vec{a}_1| = 2.553 \text{ \AA}$ bzw.

$d_{11} = |\vec{a}_1|/\sqrt{2} = 1.805 \text{ \AA}$ entlang der (1,0) bzw. (1,1)-Oberflächenrichtung ergebenden reziproken Gittervektoren \vec{g}_{10} und \vec{g}_{11} , mit:

$$|\vec{g}_{ij}| = g_{ij} = 2\pi/d_{ij} \quad i,j \in N \quad (4.8)$$

Der Spezialfall einer sich in der Kristalloberfläche mit $\vec{k}_{in} = \vec{G}_{ij}$ ausbreitenden Blochwelle weist für alle Oberflächenatome dieselbe (oder um 2π verschobene) Phase der Streuamplituden auf, verbunden mit einer konstruktiven Interferenz der Streuwellen senkrecht zur Oberfläche. Die Phasen der Streuamplituden einer sich mit dem Wellenvektor \vec{k}_{in} in (i,j)-Richtung ausbreitenden Blochwelle berechnen sich aus (ohne Berücksichtigung des Oberflächenpotentials):

$$\xi_n = nd_{ij}|\vec{k}_{in}| - nd_{ij}|\vec{k}'_{out}|\cos(\varphi'_{out}) \quad (4.9)$$

wobei \vec{k}'_{out} der Wellenvektor einer sich zur Blochwelle unter dem polaren Detektionswinkel φ'_{out} , ausbreitenden ebenen Welle ist. Der Betrag dieses Wellenvektors könnte sich von dem des Blochwellenvektors unterscheiden, so dass gilt $|\vec{k}_{in}| = |\vec{k}'_{out}| + \delta$. Der Index n in Gl. 4.9 kennzeichnet die von der Blochwelle überstrichene Anzahl paralleler Atomketten mit dem Abstand d_{ij} . Der plausiblen Annahme, dass eine Dämpfung der Blochwellenamplitude durch die Streuung an den Oberflächenatomen der Ketten auftritt, wird durch einen imaginären Wellenvektoranteil γ als Dämpfungskonstante Rechnung getragen: $|\vec{k}_{in}| \cdot (1 + i\gamma)$. Für die aus der Überlagerung der von den Atomketten n ausgehenden Partialwellen resultierende Elektronenintensität folgt:

$$I(k'_{out}, \varphi'_{out}, \delta, \gamma) = \left| \sum_{n=0}^{\infty} \exp\{-i \cdot (nd_{ij}k'_{out} \cos(\varphi'_{out}) - nd_{ij}(k'_{out} + \delta)(1 + i\gamma))\} \right|^2 \quad (4.10)$$

In Gleichung 4.10 kann die Summe ausgeführt werden, so dass gilt:

$$I(k'_{out}, \varphi'_{out}, \delta, \gamma) = \left\{ \frac{1 + \exp(-2d_{ij}\gamma(k'_{out} + \delta)) - 2\exp(-d_{ij}\gamma(k'_{out} + \delta))}{\cos(d_{ij}(k'_{out} + \delta) - d_{ij}k'_{out} \cos(\varphi'_{out}))} \right\}^{-1} \quad (4.11)$$

Beim Austritt der gebeugten Elektronen ins Vakuum muss die Überwindung der Oberflächenpotentialbarriere (siehe Gl. 4.4) mitberücksichtigt werden. Dabei gilt Impulserhaltung für die zur Oberfläche parallele Komponente von \vec{k}'_{out} , d.h. $k'_{out} \cdot \cos(\varphi'_{out}) = k_{out} \cdot \cos(\varphi_{out})$ mit $k'_{out} = \sqrt{2(E_{det} + V_0)}$ und $k_{out} = \sqrt{2E_{det}}$ (gestrichene Größen gelten innerhalb des Kristalls).

Damit ergibt sich für die durch Blochwellenbeugung ins Vakuum emittierte Elektronenintensität:

$$I(E_{\text{det}}, \varphi_{\text{out}}, \delta, \gamma) = \frac{S(E_{\text{det}}, \varphi_{\text{out}})}{\left\{1 + \exp(-2\kappa\gamma) - 2 \exp(-\kappa\gamma) \cdot \cos\left(\kappa - d_{ij} \sqrt{2E_{\text{det}}} \cos(\varphi_{\text{out}})\right)\right\}} \quad (4.12)$$

Wobei $\kappa = d_{ij} \left(\sqrt{2(E_{\text{det}} + V_0)} + \delta \right)$ und der Vorfaktor $S(E_{\text{det}}, \varphi_{\text{out}})$ der spektralen Intensitätsverteilung derjenigen Elektronen entspricht, die Blochwellenzustände in (i,j)-Richtung besetzen. Es sei darauf hingewiesen dass Gl. 4.12 einer semiempirischen Abschätzung der unter den Modellannahmen entstehenden gebeugten Elektronenintensität entspricht, wobei hier restriktiv die Detektionsebene von \vec{k}_{in} und der Oberflächennormalen aufgespannt wird (eindimensionaler Fall). Trotz dieser Einschränkungen kann Gl. 4.12 sowohl zur Verifikation der Energieabhängigkeit möglicher ioneninduzierter Beugungsreflexe als auch zu ersten quantitativen Einblicken in den zugrunde liegenden Anregungsprozess genutzt werden (Abschätzung der Parameter γ und δ). Hinsichtlich konventioneller LEED-Experimente ist ein Nachweis von Beugungsspot in der Winkelverteilung emittierter Elektronen und deren Abhängigkeit vom zweidimensionalen reziproken Gitter der Kristalloberfläche ein eindeutiger Beweis für die Existenz ioneninduzierter LEED-Phänomene.

4.3 Nachweis von Beugungsreflexen

Zur Verifizierung der Beugungshypothese wurden mit Hilfe der Elektronenoptik einer konventionellen SPA-LEED Einheit bei verschiedenen Energien raumwinkelaufgelöste zweidimensionale Elektronenverteilungen aufgenommen. Angeregt werden die Elektronen je nach detektierter Energie von 25-29 keV He bzw. H-Projektilen, die unter einem polaren Einfallswinkel von

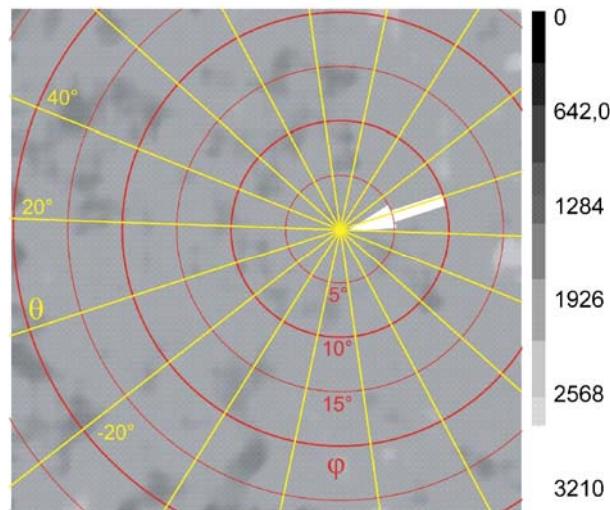


Abb. 4.4: Raumwinkelverteilung emittierter Elektronen mit Energien im Bereich von 17 bis 23 eV einer unpräparierten, polykristallinen Eisenoberfläche (*Targethalter*), eingezeichnet ist die Richtung der einfallenden Ionen und das polare Koordinatensystem (φ ist der polare- und θ der azimutale Emissionswinkel)

$\phi_{in}=1.6^\circ$ zur Oberfläche gestreut werden. Eine Beschreibung des Messablaufes ist Kapitel 3.4 zu entnehmen. Zur Abschätzung möglicher, insbesondere in den Randbereichen der Detektion auftretender apparaturbedingter Abbildungsfehler (Astigmatismus und Regenbogeneffekte) wurden Emissionsmessungen an einer polykristallinen Fe-Oberfläche des Targethalters durchgeführt. Dazu wurde das Target lateral aus der Streugeometrie herausgeschoben, so dass der Ionenstrahl unter einem vergleichbaren Einfallswinkel auf die mechanisch polierte Oberfläche des Targethalters trifft. Abb. 4.4 zeigt exemplarisch eine unter diesen Umständen gemessene Raumwinkelverteilung emittierter Elektronen im Energiebereich von 17 eV bis 23 eV (kurz: 20 ± 3 eV). Im Vergleich zu den Rohdaten in Abb. 3.9 wurde hier nach der Messung sowohl eine zweidimensionale Intensitätsglättung (5-Punkt-Mittelwertglättung) als auch eine Verringerung der Graustufen durchgeführt (siehe Legende). Weiterhin sind zur Orientierung die Richtung des einfallenden Ionenstrahls und das polare Koordinatensystem eingezeichnet. Der von der Spitze des eingezeichneten Pfeils markierte Ursprung des Koordinatengitters entspricht der Oberflächennormalen ($\varphi=0^\circ$), der radiale Abstand vom Ursprung skaliert mit dem polaren Emissionswinkel (φ) (siehe dazu Erläuterungen zu Abb. 3.7). Der azimutale Winkel θ bezieht sich rechts

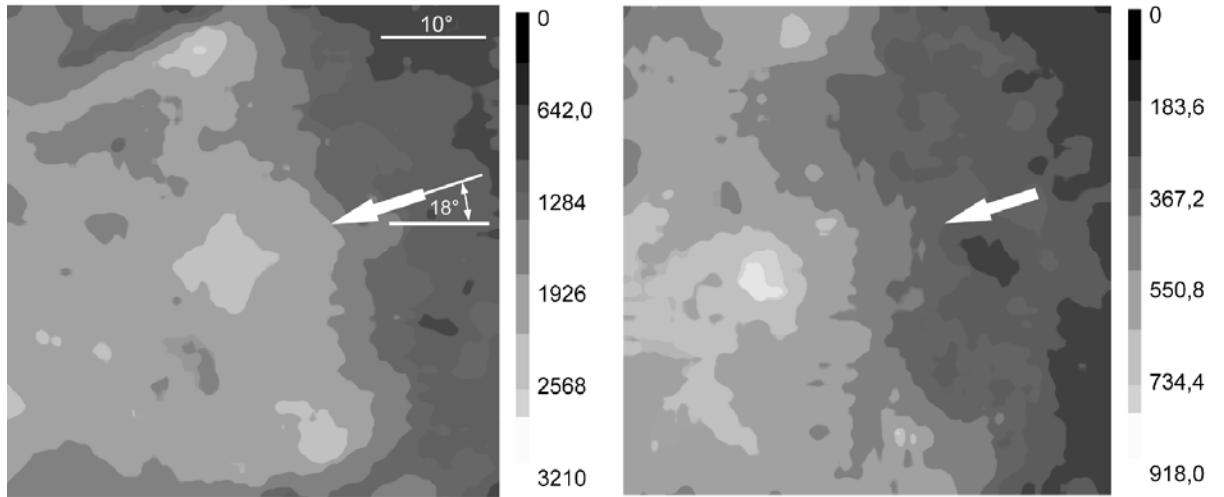


Abb. 4.5: Raumwinkelverteilungen emittierter Elektronen mit Energien von 20 ± 3 eV (oben) und 30 ± 3 eV (unten) einer Cu(001) Oberfläche. Die Einfallsrichtung des 25 keV-He⁺-Ionenstrahls (Pfeil) verläuft parallel zur [10]-Oberflächengitterrichtung.

drehend auf die Richtung des einfallenden Ionenstrahls ($\theta=0^\circ$). Zu erkennen ist eine erwartungsgemäß gleichmäßige Ausleuchtung des gesamten Detektionsgebietes. Die Rauigkeit der unpräparierten Oberfläche ($\sim \mu\text{m}$) führt zur erhöhten Aufstreuung der Ionen, verbunden mit einer nahezu isotropen Abstrahlung von Elektronen in den oberen Halbraum. Eine mit apparaturbedingten Fokussierungs- oder Regenbogeneffekten einhergehende Intensitätsüberhöhung innerhalb des detektierten Winkelbereiches konnte nicht festgestellt werden.

Im Falle der einkristallinen Cu(001)-Oberfläche sind die Impulse angeregter Primärelektronen \vec{k}_{in} , insbesondere bei höheren Energien, bevorzugt in Richtung des einfallenden Ionenstrahls orientiert (siehe Abb. 4.2, auch [HZ94]), so dass für eine effektive Besetzung von Blochwellenzuständen ein parallel zu einer niederindizierten Oberflächengitterrichtung ([10], [11] oder [21]) einfallender Ionenstrahl gewählt wurde. Abb. 4.5 zeigt die, bei der Streuung parallel zur [10]-Oberflächengitterrichtung (hier: Strahlrichtung \parallel [10]) auftretende, raumwinkel aufgelöste Emissionsverteilung von Elektronen mit Energien von (20 ± 3) eV und (30 ± 3) eV. Entsprechend den Ausführungen zur Elektronenanregung werden in Strahlrichtung zunehmende Elektronenintensitäten gemessen. Allerdings zeigen sich in Abb. 4.5 im Unterschied zur isotropen Winkelverteilung an der polykristallinen Oberfläche (Abb. 4.4) Spot-ähnliche Intensitätsüberhöhungen in der Streuebene ($\theta=0^\circ$) und symmetrisch zu beiden Seiten der Strahlrichtung.

Das Verhältnis von Spot (I_S)- zu Untergrundintensität (I_U) liegt je nach detektierter Elektronenenergie im Bereich von $I_S/I_U \approx 1.2$ bis 1.4. Eine sich in der Streuebene, entlang der [10]-Oberflächengitterrichtung, ausbreitende Blochwelle mit $\vec{k}_{in} = \vec{G}_{10} = 1.302 a.u.$ führt in Übereinstimmung mit Gl. 4.12 zum senkrechten Austritt der gebeugten Welle, die nach Überwindung

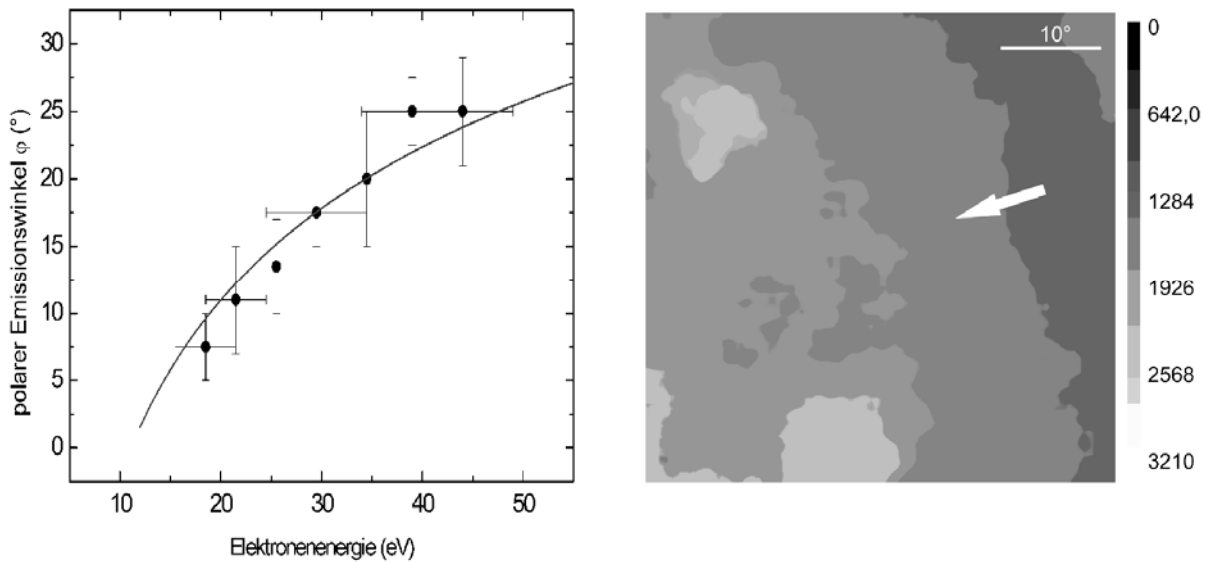


Abb. 4.6 links: Vergleich der theoretischen Abhängigkeit des polaren Emissionswinkels von der detektierten Elektronenenergie nach Gl. 4.12 (–) mit den exp. beobachteten Spotpositionen (zentraler Spot in Abb. 4.5) (●), die Ausbreitungsrichtung der angeregten Blochwellen verlaufen entlang der [10]-Oberflächengitterrichtung, d.h. parallel zum einfallenden 25 keV He^+ -Strahl; rechts: wie Abb. 4.5 links, aber Strahleinfallsrichtung parallel zur [11]-Oberflächengitterrichtung

des Oberflächenpotentials ($V_0=12$ eV [CS99]) und unter der Annahme, dass keine weiteren energetischen Verlustprozesse eintreten (d.h. $\delta=0 \pm 0.1$ a.u. in Gl. 4.12), bei einer Elektronenenergie von $E_{\text{det}}=11.1$ eV zu beobachten sein sollte. LEED-Spot-ähnliche Intensitäten entlang der [10]-Strahlrichtung wie in Abb. 4.5 gezeigt, werden allerdings erst bei höheren Energien, d.h. ab 15 eV beobachtet. Eine Diskussion für den Spezialfall der senkrechten Beugung entlang der [10]-Gitterrichtung ist Teil des nachfolgenden Unterkapitels. Größere Blochwellenvektoren $|\vec{k}_{\text{in}}| > |\vec{G}_{10}|$ führen entsprechend Gl. 4.12 zu größeren polaren Emissionswinkeln der gebeugten Intensität, d.h. die Beugungsspotps verschieben sich in Richtung der angeregten Primärwelle. Abb. 4.6 links zeigt die aus Gl. 4.12 berechnete Änderung des polaren Detektionswinkels φ in Abhängigkeit von der Elektronenenergie. Eine vergleichbare energieabhängige Zunahme von φ in Richtung des anregenden Ionenstrahls wird auch experimentell beobachtet. Der zentrale in der Streuebene liegende Spot in Abb. 4.5 links verschiebt sich mit zunehmender Detektionsenergie kontinuierlich in Strahlrichtung (vgl. Abb. 4.5 rechts). Sowohl die absoluten polaren Emissionswinkel als auch die energetische Abhängigkeit $\varphi_{\text{det}}(E_{\text{det}})$ der beobachteten Spots stehen in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Vorhersagen der Beugungshypothese (siehe Abb. 4.6 links).

Im Vergleich zu Abb. 4.5 hat eine azimuthale Drehung des Targets um 45° die Anregung von Blochwellen überwiegend entlang der [11]-Oberflächengitterrichtung zur Folge (hier: Strahlrichtung \parallel [11]). Für angeregte ebene Primärwellen entlang dieser Richtung folgt die senkrechte

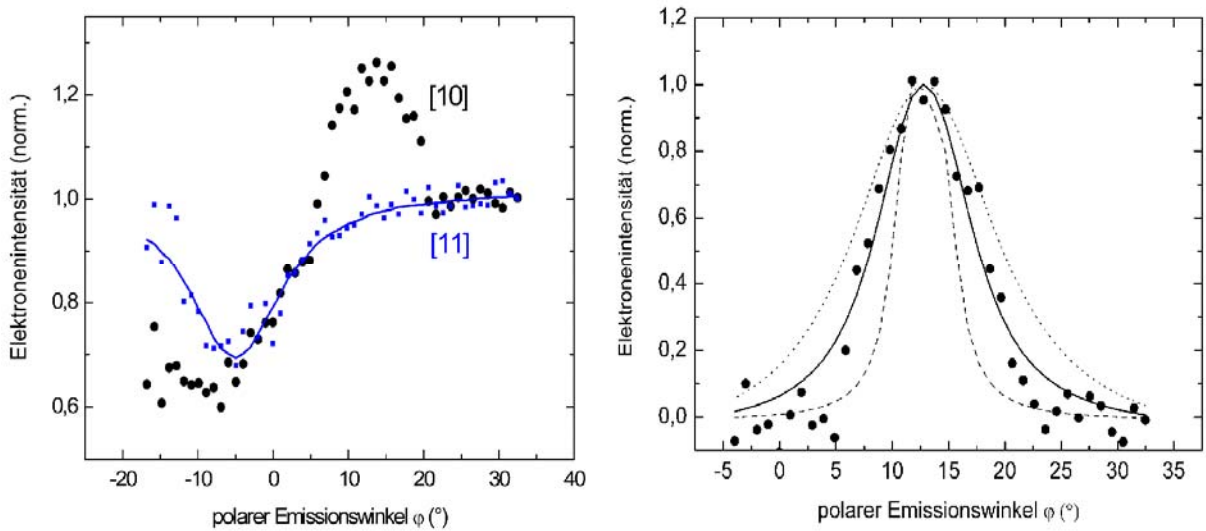


Abb. 4.7: links: Intensitätsprofil entlang der [10]-Strahlrichtung (●) und der [11]-Richtung (●) bei einer Detektionsenergie von 22.5 ± 2.5 eV, der aus der [11]-Messung folgende Verlauf (—) wurde als Untergrund verwendet (weiteres siehe Text), rechts: normiertes IILEED-Spot-Profil gewonnen aus dem Intensitätsprofil entlang der [10]-Strahlrichtung nach Untergrundsubtraktion (●) (siehe links), eingezeichnet sind aus Gl. 4.13 angepasste Intensitätsverteilungen mit unterschiedlichen Dämpfungskonstanten $\gamma = 0.10$ (····), 0.06 (— · —) und 0.02 (—)

Emission gebeugter Elektronen wegen $\vec{k}_{in} = \vec{G}_{11} = 1.842 a.u.$ erst bei einer Detektionsenergie von $E_{det} = 34.2$ eV. Für die in Abb. 4.6 rechts dargestellte Raumwinkelverteilung emittierter Elektronen mit $E_{det} = 20 \pm 3$ eV folgt für diesen Beugungsspot ($\varphi = -15^\circ$, $\theta = 0^\circ$) - ansatzweise in der erhöhten rückwärtigen Intensität zu erkennen. Der aus der Beugung an den [10]-Atomreihen resultierende zentrale Spot in Abb. 4.5 links ist folgerichtig für die [11]-Streurichtung nicht nachweisbar. Ein weiteres Indiz für den beugungsbedingten Ursprung der beobachteten Intensitäten. Die Bestimmung aller außerhalb der Streuebene liegender IILEED-Spots erfolgt in einem späteren Abschnitt.

Nach der Identifizierung beugungsbedingter Intensitäten in der ioneninduzierten Elektronenemission, wird eine erste Abschätzung der Dämpfungskonstante γ über die polare Breite der beobachteten Spots vorgenommen. Dazu wird in Bezug auf Abb. 4.5 links die gemessene Intensität entlang der Strahlrichtung über den polaren Emissionswinkel φ aufgetragen (Abb. 4.7 links). Der Verlauf der Untergrundintensität kann unter der erfüllten Voraussetzung gleicher Emissionsbedingungen aus der Raumwinkelverteilung für die Streuung entlang der [11]-Richtung (siehe Abb. 4.6 rechts) gewonnen werden ((—) in Abb. 4.7 links).

Nach Abzug des so ermittelten Elektronenuntergrundes ergibt sich das in Abb. 4.7 rechts dargestellte polare Intensitätsprofil entlang der [10]-Strahlrichtung für Elektronenenergien im Bereich von 20 eV bis 25 eV. Eine stärkere Dämpfung der angeregten Blochwelle entspricht einer Reduzierung der zur Beugung beitragenden Streuzentren, d.h. einer Verringerung der mittleren Kohärenzlänge verbunden mit einer Verbreiterung der Beugungsspots. Allerdings muss bei der

Anpassung des gaußförmigen Spotprofils aus Gl. 4.12 das relativ weite experimentelle Energiefenster mitberücksichtigt werden. Im betrachteten Energiebereich wandert der Spot theoretisch um $\Delta\varphi=3.9^\circ$. Dies entspricht ca. 30 % der vollen Peakbreite des Spots (ca. 14°), so dass eine Faltung von Gl. 4.12 über den experimentellen Energiebereich sinnvoll erscheint, d.h.:

$$I_{fit}(\varphi_{out}, \gamma) = N \cdot \int_{E_{ini}}^{E_{end}} I(\varphi_{out}, \gamma, E_{det}) dE_{det} \quad (4.13)$$

N entspricht eine Normierungskonstante. Über die Anpassung von Gl. 4.13 an das experimentell gewonnene Spotprofil kann eine Dämpfungskonstante von $\gamma=0.06\pm0.03$ abgeschätzt werden

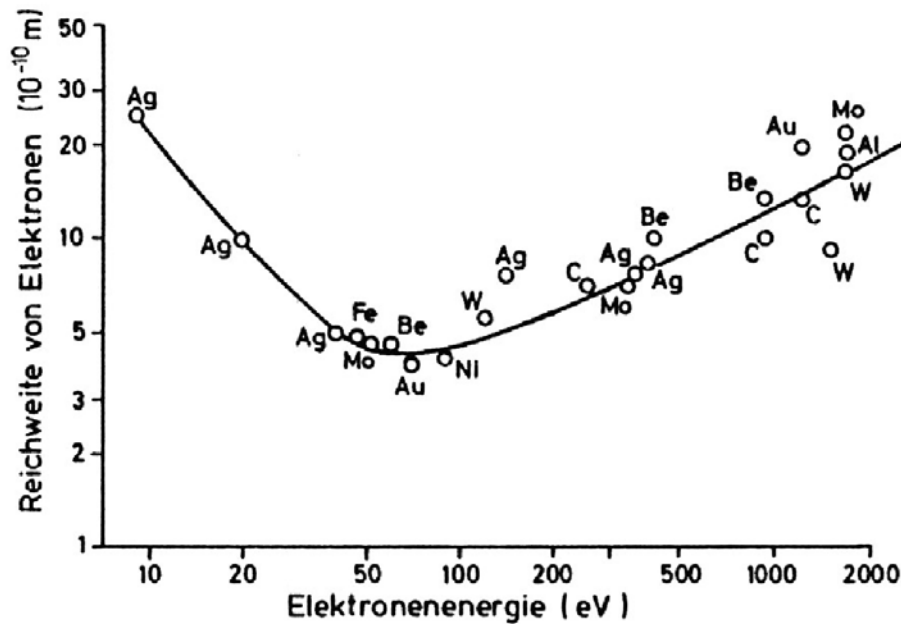


Abb. 4.8: typische mittlere freie Weglängen von Elektronen in metallischen Festkörpern in Abhängigkeit von der Elektronenenergie, aus [HG94]

Dem entspricht eine Amplitudenreduzierung der sich ausbreitenden Blochwelle auf $1/e$ nach ca. $l_{kohär} = (8\pm3) \text{ \AA}$, d.h. nach dem Durchlaufen von drei parallelen [10]-Atomketten. Dies gilt speziell für angeregte Blochwellen, die sich mit Energien von 32 eV bis 37 eV entlang der [10]-Oberflächengitterrichtung innerhalb der Kristalloberfläche ausbreiten. Allerdings führen Spotanalysen anderer Energien und Kanalrichtungen zu vergleichbaren Resultaten. Die aus der Beugungshypothese abgeschätzte Reichweite einer Blochwelle von ca. 8 \AA liegt in der Größenordnung der mittleren freien Weglänge von Elektronen in metallischen Festkörpern (Abb. 4.8). Elektronen mit Energien von 35 eV weisen entsprechend dieser „Universalkurve“ eine mittlere Reichweite bis zu einem inelastischen Stoß von etwa 7 \AA auf [SD79]. Dieser Wert gibt tatsächlich eine obere Grenze für die in der Beugungshypothese vorausgesetzte freie, d.h. ohne Energieverlust stattfindende, Ausbreitung ebener Wellen vor, da für größere Reichweiten der Blochwellen energiedissipative Prozesse mit zu berücksichtigen wären.

Zusammenfassend können mit der unter Kapitel 3.4 beschriebenen Messanordnung ioneninduzierte Beugungsreflexe beobachtet werden. Erzeugt werden diese Reflexe durch angeregte ebene Wellen oder Wellenfronten, die sich entlang niederindizierter Kristallrichtungen mit Wellenvektoren parallel zur Probenoberfläche ausbreiten. Die zur Beugung führende Mehrfachstreuung angeregter Elektronen verläuft elastisch, d.h. es gilt im Kristall $k_{in}=k_{out}$. Die aus den Beugungsspoten abgeschätzte Abklinglänge bzw. mittlere Kohärenzlänge der Primärwelle entspricht der mittleren freien Weglänge von Elektronen in Metallen und beträgt ca. (8 ± 3) Å für 35 eV Elektronen.

4.4 Modifizierte Ewaldkonstruktion und Energieabhängigkeit

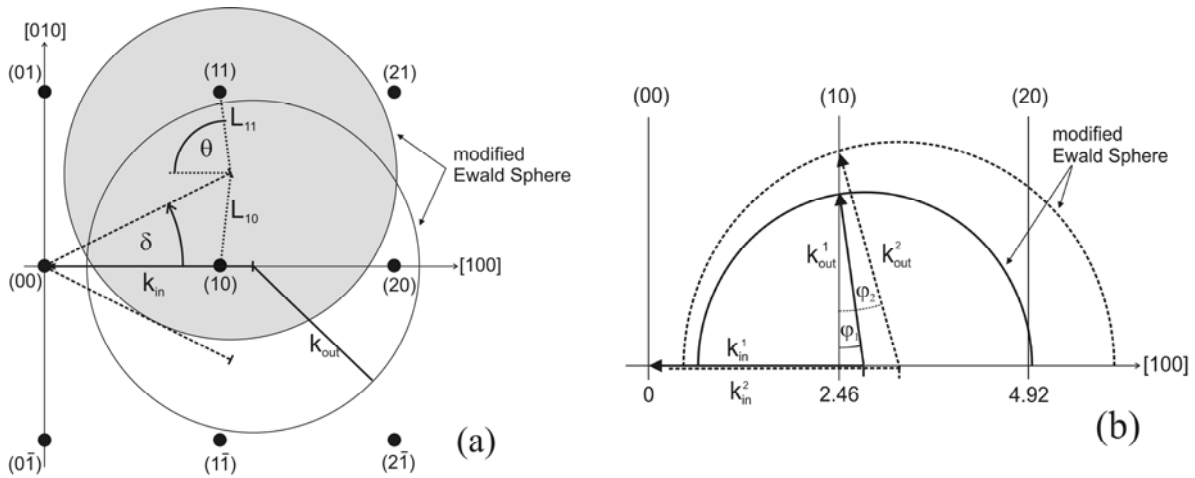


Abb. 4.9: modifizierte Ewaldkonstruktion zur Bestimmung der IILEED-Reflexpositionen des quadratischen Cu(001)-Oberflächengitters in Aufsicht (links) und Seitenansicht (rechts). Der Anregungskonus führt zu einer kontinuierlichen Drehung der Ewaldkugel um $-\delta_{max} \leq \delta \leq \delta_{max}$. Anhand der rechten Abbildung kann die Erhöhung des polaren Beugungswinkels mit steigender Elektronenenergie nachvollzogen werden.

Wie im vorigen Abschnitt gezeigt, sind die in der Streuebene beobachteten IILEED-Spots auf die elastische Beugung und unmittelbare Emission kurzreichweitiger, planarer Elektronenwellen zurückzuführen. Somit bietet sich die Bestimmung aller durch das zweidimensionale Oberflächengitter erzeugten Beugungsreflexe in Form einer LEED-ähnlichen Ewaldkonstruktion an (vgl. dazu Kap. 2.2).

Unter Beachtung des Oberflächenpotentials $V_0=12$ eV für Cu(001) folgt aus der Differenz zwischen dem anfänglichen Impuls der angeregten Primärwelle $k_{in} = \sqrt{2 \cdot (E_e + V_0)}$ und dem Impuls der elastisch ins Vakuum emittierten gebeugten Welle $k_{out} = \sqrt{2 \cdot E_e}$ die in Abb. 4.9 gezeigte modifizierte Ewaldkonstruktion in Aufsicht (Abb. 4.9 links) und in Seitenansicht (Abb. 4.9 rechts). Die Wirkung des zu überwindenden Oberflächenpotentials führt zur Änderung des

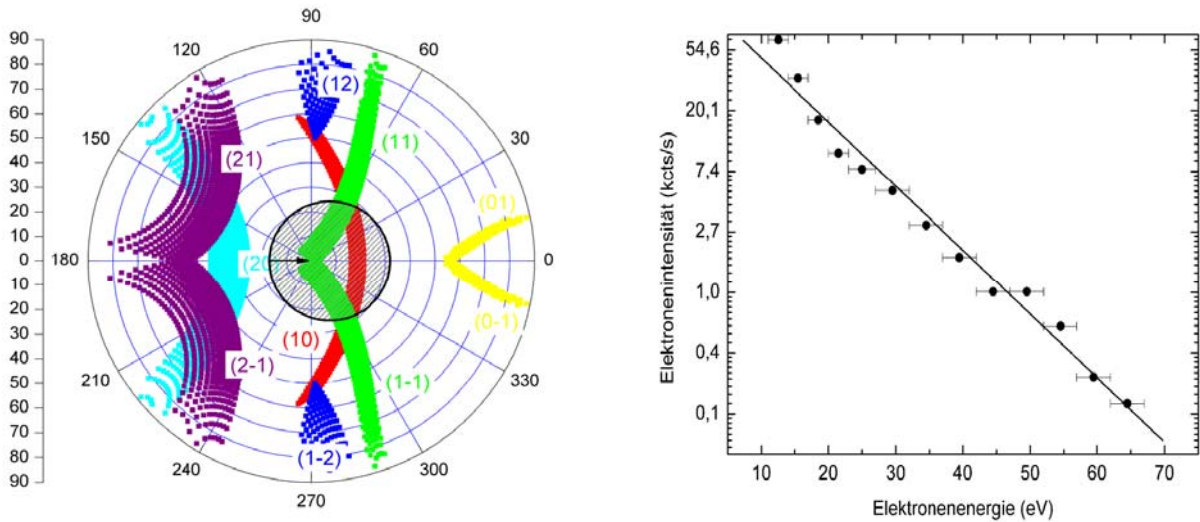


Abb. 4.10: links: Winkelpositionen mittels Ewaldkonstruktion berechneter Beugungsintensitäten für eine Detektionsenergie von 32 ± 5 eV und einer Ionenstrahlrichtung parallel zum [100]-Kanal. Die bogenartigen Reflexe resultieren aus dem Anregungskonus ($\delta = \pm 45^\circ$), grau markiert ist der Detektionsbereich rechts: Energieabhängigkeit der in den gesamten Detektionsbereich ($\varphi_{\text{det}} = -15^\circ$ bis 30° zur Oberflächennormalen) emittierten Elektronenintensität in logarithmischer Darstellung bei Anregung durch 25 keV-He⁺-Ionen in axialer Streugeometrie (Strahlrichtung \parallel [100], $\varphi_{\text{in}} = 1.6^\circ$)

polaren Detektionswinkels des dargestellten $(10)_{[100]}$ -Spots ((10)-Laue-Reflex des in die [100]-Oberflächenrichtung angeregten Elektrons) von $\arcsin[(k_{\text{in}} - g_{10})/k_{\text{in}}]$ nach $\arcsin[(k_{\text{in}} - g_{10})/k_{\text{out}}]$, wobei $g_{10} \equiv 2.46 \text{ \AA}^{-1}$ gilt (vgl. Abb. 4.9 rechts). Die Bedingungen für das Auftreten konstruktiv interferierender gebeugter Partialwellen sind gemäß der Ewaldkonstruktion für die Durchstoßpunkte der Stangen des reziproken Gitters mit der Ewaldhalbkugel erfüllt. Die Emissionswinkel ergeben sich geometrisch aus den Verbindungslinien dieser Punkte mit dem durch \vec{k}_{in} festgelegten Mittelpunkt der Ewaldkugel. Demzufolge führen alle reziproken Gitterpunkte zu IILEED-Reflexen, die innerhalb des in Abb. 4.9 links exemplarisch für 32 eV Elektronen ($k_{\text{in}} = 3.4 \text{ \AA}^{-1}$; $k_{\text{out}} = 2.90 \text{ \AA}^{-1}$) eingezeichneten Kreisumfanges liegen. Sowohl die geringe Kohärenzlänge der gebeugten Wellen als auch die energetische Detektionsbreite haben eine Aufweitung der Reflexe zur Folge. Weiterhin können Elektronen entsprechend den Ausführungen in Kapitel 4.1 abhängig vom Energieübertrag über einen weiten Raumwinkelbereich angeregt werden.

Dem daraus resultierenden, in der Oberfläche liegenden Anregungskonus (Abb. 4.2) wird durch eine kontinuierliche Drehung der Ewaldkugel um den Öffnungswinkel $\pm \delta_{\text{max}}$ zur Strahlrichtung Rechnung getragen. So sind beispielsweise bei der Streuung entlang der [100]-Oberflächenrichtung auch angeregte Primärwellen entlang der [210]-Richtung mit $\delta = 26.56^\circ$ zu

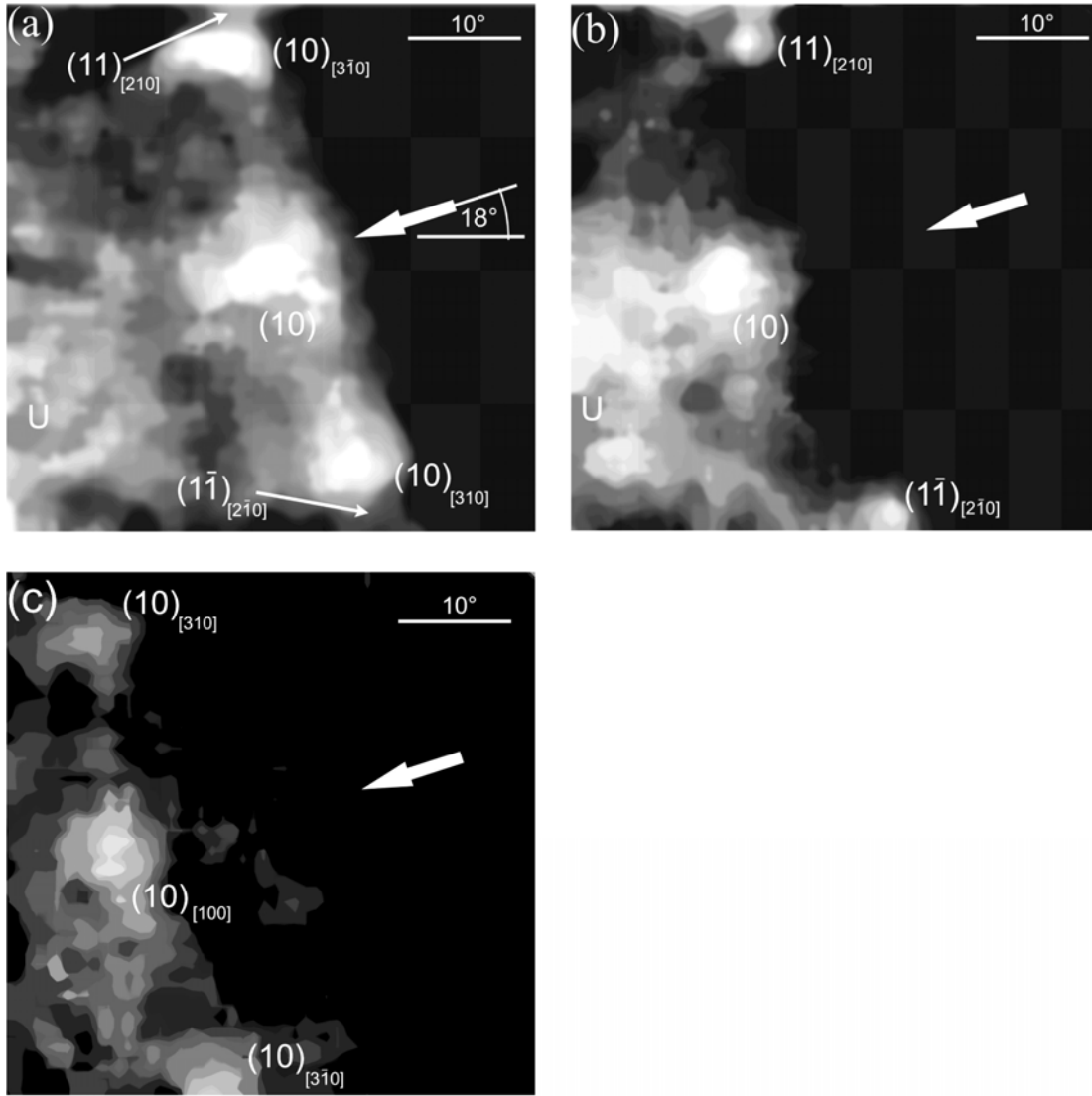


Abb. 4.11: raumwinkelaufgelöste Winkelverteilung emittierter Elektronen für eine Detektionsenergie von 20 ± 3 eV (a), 32 ± 5 eV (b), 44 ± 6 eV (c), nach Untergrundabzug von ca. 70 % der Maximalintensität, Anregung: 25 keV $\text{He}^+ \parallel [100]$, $\phi_{\text{in}} = 1.6^\circ$; Der Pfeil markiert die Einfallsrichtung der Ionen. Die Pfeilspitze markiert die Oberflächennormale.

erwarten (grau schattierter Kreis in Abb. 4.9 links). Die polaren Winkel der auf diese Weise ebenfalls erlaubten $(11)_{[210]}$ - bzw. $(10)_{[210]}$ -Reflexe können entsprechend den Bezeichnungen in Abb. 4.9 über $\sin^{-1}(L_{11} / k_{\text{out}})$ bzw. $\sin^{-1}(L_{10} / k_{\text{out}})$ berechnet werden. Allerdings führt die durch den Anregungskonus bedingte kontinuierliche Drehung der Ewaldkugel zu einer bogenartigen azimuthalen Ausschmierung aller auftretenden Reflexe. Abbildung 4.10 links zeigt die aus einer solchen geometrischen Konstruktion berechenbare Winkelverteilung der Reflexbänder bei einer Elektronenenergie von 32 ± 5 eV mit einem willkürlich angenommenen Öffnungswinkel des Anregungskonus von $\delta_{\text{max}} = 45^\circ$. Abbildung 4.11 (a) zeigt IILEED-Reflexe für Elektronenenergien zwischen 17 und 23 eV, die bei der Streuung von 25 keV He^+ -Ionen bei einem azimuthalen Einfall parallel zur $[100]$ -Gitterrichtung entstehen. Das Minimum der Grauskala (schwarz) wurde hier dem Untergrund inelastisch gestreuter Elektronen (60 %- 80% der Maximalintensi-

tät) angepasst. Über die modifizierte Ewaldkonstruktion kann die Position des $(10)_{[100]}$ -Spots mit k_{in} (k_{out}) von 2.76 \AA^{-1} (2.11 \AA^{-1}) und 3.03 \AA^{-1} (2.46 \AA^{-1}) für 17 eV bzw. 23 eV auf ($\varphi=8-12^\circ$, $\theta=0^\circ$) berechnet und dem experimentellen IILEED-Spot bei $(9\pm3^\circ, \pm4^\circ)$ in Abb. 4.11 (a) zugeordnet werden. Statt der zu erwartenden Intensitätsbänder werden auch in azimuthaler Richtung lokalisierte Beugungsintensitäten gemessen, die entsprechend den Vorgaben des reziproken Gitters spiegelsymmetrisch zur $[10]$ -Strahlrichtung erzeugt werden.

Die Winkelpositionen dieser spotartigen Reflexe lassen abgesehen von der primären Anregung in Ionenstrahlrichtung auf weitere diskrete Anregungsrichtungen parallel zu niederindizierten Oberflächenkanälen schließen. Für Elektronenenergien von 17 bzw. {23 eV} wird für die $[210]$ -Anregungsrichtung ($\delta=26.6^\circ$) der $(11)_{[210]}$ -Spot bei $(35^\circ, 90^\circ)$ $\{(28^\circ, 77^\circ)\}$ und symmetrisch dazu für die $[2-10]$ -Anregung der $(1-1)_{[2-10]}$ -Spot bei $(35^\circ, -90^\circ)$ $\{(28^\circ, -77^\circ)\}$ erwartet. Weiterhin entstehen dann die Reflexe $(10)_{[210]}$ und $(10)_{[2-10]}$ bei $(35\pm1^\circ, -85\pm5^\circ)$ bzw. $(35\pm1^\circ, 85\pm5^\circ)$ (Die angegebenen Winkelintervalle umfassen nur die aus der Konstruktion folgende energetische Verschiebung der Spots, nicht deren tatsächliche durch die Kohärenzlänge vorgegebene Breite). In diesem Energiebereich liegen demnach alle Spots außerhalb des Detektionsbereichs. Für einen Anregungswinkel von $\delta=18.4^\circ$ korrespondierend mit der $[310]$ -Anregungsrichtung liegen die $(10)_{[310]}$ bzw. $(10)_{[3-10]}$ -Reflexe bei $(25\pm1^\circ, \pm73\pm7^\circ)$, wohingegen die $(11)_{[3\pm10]}$ -Spots weit außerhalb des Detektionsbereichs auftreten. Demzufolge können die experimentellen Intensitäten in Abb. 4.11 (a) bei $(24\pm3^\circ, \pm74\pm7^\circ)$ den $(10)_{[3\pm10]}$ -Reflexen zugeordnet werden. Die Intensitäten an den Rändern des Detektionsbereichs deuten auf Ausläufer der $(11)_{[2\pm10]}$ -Spots hin. Der Öffnungswinkel des Anregungskonus kann auf Werte zwischen $26^\circ \leq \delta_{\max} \leq 34^\circ$ für Elektronenenergien von $20\pm3 \text{ eV}$ abgeschätzt werden, wobei die Bestimmung der oberen Grenze aus dem nicht detektierten $(11)_{[320]}$ -Reflex ($\delta=33.7^\circ$) bei $(23\pm5^\circ, 92\pm7^\circ)$ folgt. Die in Strahlrichtung zunehmende, weitgehend inelastische Elektronenintensität wurde mit „U“ gekennzeichnet. Der Grund für die Auszeichnung niederindizierter Gitterrichtungen bei der Ioneninduzierten Elektronenbeugung an Cu(001) kann nicht abschließend geklärt werden. Allerdings deuten die leicht erhöhten Intensitäten zwischen den einzelnen Spots (z.B. in Abb. 4.11 (a)) darauf hin, dass gemäß der Ewaldkonstruktion auch in beliebiger Anregungsrichtung (Random) die direkte Emission gebeugter Elektronen möglich ist.

Die deutlich erhöhten Beugungsintensitäten von Elektronen mit Anregungsrichtungen entlang niederindizierter Kanäle könnten auf einer anregungsbedingten Fokussierung der Elektronen oder auf eingeschränkten kohärenten Emissionsprozessen, z.B. durch erhöhte Dämpfung und

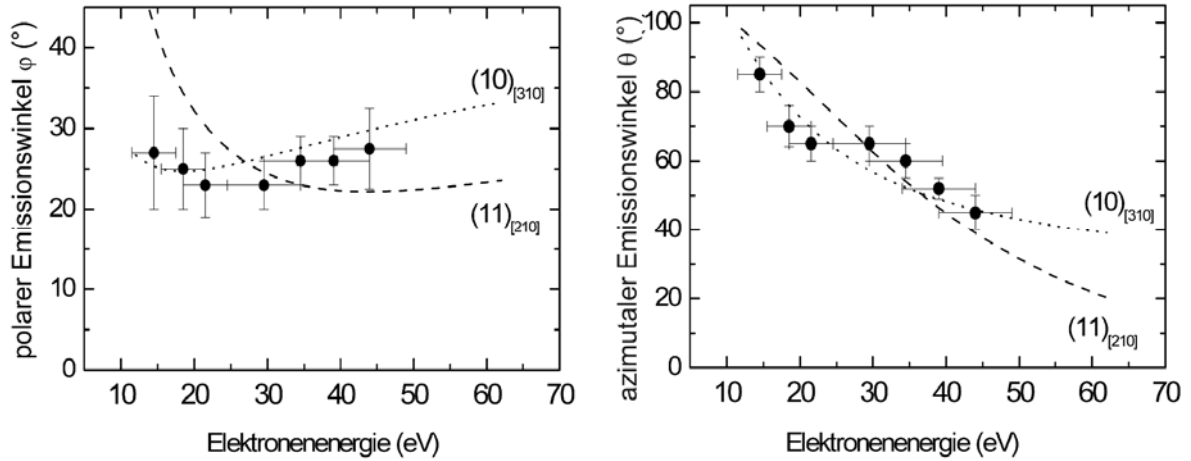


Abb. 4.12: berechnete Änderung des polaren (φ) und azimutalen (θ) Emissionswinkels in Abhängigkeit von der Detektionsenergie für den $(10)_{[310]}$ -Beugungsreflex (····) und den $(11)_{[210]}$ -Reflex (---) im Vergleich zu den aus der Raumwinkelverteilung gewonnenen Reflexpositionen (●) (siehe Abb. 4.11a-c)

Deformierung ebener Elektronenwellen, für Randausbreitung beruhen. Die erste Hypothese wird gestützt durch elektroneninduzierte Messungen zur energieaufgelösten Winkelverteilung von Sekundärelektronen auf Cu(001) von Burns *et al.* [BU60], der Überstrukturen in der Emissionswinkelverteilung mit einer Fokussierung entlang niederindizierter Kristallrichtungen erklärt, insbesondere für elektronische Interbandanregung, d.h. für Elektronen, die über die erste Brillouinzone hinaus angeregt werden. Ausgehend von der zu überwindenden Oberflächenpotentialbarriere für Cu und Ni sind solche Interbandanregungen notwendige Bedingung zur Erzeugung austrittsfähiger Elektronen.

Bei steigender Detektionsenergie führt die Erhöhung von \vec{k}_{out} (\vec{k}_{in}) zu einer Änderung der $(10)_{[100]}$ -Spot-Winkelposition gemäß Gl.4.12. Die Ewaldkonstruktion in Abbildung 4.9 rechts zeigt dazu korrespondierend die für $\vec{k}_{out}^2 > \vec{k}_{out}^1$ verbundene Verschiebung des $(10)_{[100]}$ -Spots in Strahlrichtung. Grundsätzlich geht die Erhöhung der Detektionsenergie mit einer Vergrößerung des polaren Emissionswinkels und damit mit der Wanderung aller Beugungsreflexe in Strahlrichtung einher. Für eine Detektionsenergie von 32 ± 5 eV und beibehaltener Streurichtung (Abb. 4.11 (b)) wandert erwartungsgemäß der $(10)_{[100]}$ -Spot von $(9 \pm 3^\circ, \pm 4^\circ)$ bei 20 ± 3 eV auf $(18.5 \pm 2^\circ, 2 \pm 3^\circ)$ (theor.: $(18.5 \pm 2.5^\circ, 0^\circ)$). Die bei einer Energie von 20 ± 3 eV noch detektierbaren $(10)_{[310]}$ -Spots liegen bei einer Erhöhung um 12 eV mit $(27 \pm 1^\circ, \pm 54 \pm 4^\circ)$ knapp außerhalb des Beobachtungsbereichs. Stattdessen treten die $(1 \pm 1)_{[210]}$ -Spots mit $(23 \pm 2^\circ, \pm 60 \pm 10^\circ)$ in den beobachtbaren Winkelbereich.

Dementsprechend können die auftretenden Reflexe bei $(23 \pm 3^\circ, \pm 64 \pm 5^\circ)$ hauptsächlich den $(1 \pm 1)_{[210]}$ -Reflexen zugeordnet werden. Das Auftreten dieser Nebenreflexe setzt auch bei einer Detektionsenergie von 32 ± 5 eV einen Anregungswinkel von mindestens $\delta \approx 26^\circ$ voraus. Die

Energie dieser Elektronen innerhalb der Kristalloberfläche liegt mit ca. 44 eV im Bereich der im Rahmen des klassischen Binärkollisionsmodells für 25 keV He^+ -Projektile maximal möglichen Anregungsenergie für Fermielektronen ($E_{\text{max}}=40.3$ eV). Der damit verbundene maximale Elektronenimpuls verläuft in diesem Fall parallel zur Ausbreitungsrichtung der Ionen. Daraus

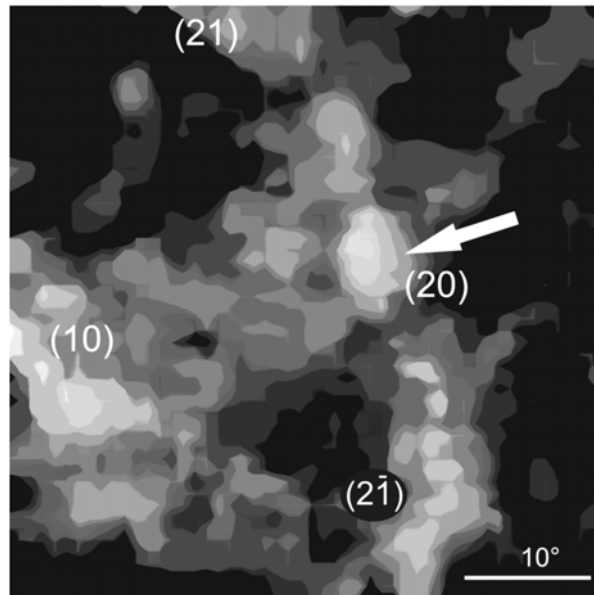


Abb. 4.13: Raumwinkelaufgelöste Winkelverteilung emittierter Elektronen für eine Detektionsenergie von 105 ± 7 eV, angeregt wurde mit 29 keV H^+ -Ionen \parallel [100]-Gitterrichtung nach Untergrundabzug von 70 %.

folgend liegt der in diesem Energiebereich für binärstoßangeregte Elektronen zu erwartende Öffnungswinkel weit unterhalb des aus den Beugungsspot zu entnehmenden experimentellen Anregungskonus von $\delta_{\text{max}} \approx \pm 26^\circ$. In dem Zusammenhang zeigt auch das aus den SPA-LEED-Messungen gewonnene winkelintegrale Energiespektrum (Abb. 4.10 rechts) ein mit steigender Elektronenenergie annähernd exponentielles Abklingen der emittierten Elektronenintensität mit der Folge, dass auch bei Energien jenseits der klassischen Anregungsgrenze für Leitungsbandelektronen Emissionsereignisse stattfinden. Der zunehmende Einfluss dieser primär durch Innerschalenionisation entstehenden hochenergetischen Elektronen, mit Anregungsenergien von bis zu 220 eV, und deren Sekundärelektronenkaskaden (siehe Kapitel 5) könnte ein Grund für den erhöhten Öffnungswinkel δ sein.

Erst im Energieintervall von 44 ± 6 eV deuten die symmetrisch zur Strahlrichtung auftretenden Intensitäten bei $(27 \pm 5^\circ, \pm 45 \pm 5^\circ)$ (Abb. 4.11 (c)), die den $(10)_{[3\pm 10]}$ -Beugungsreflexen (theo.: $29 \pm 2^\circ, \pm 45 \pm 3^\circ$) zuzuweisen sind, auf eine Reduzierung des Anregungskonus auf $18^\circ \leq \delta_{\text{max}} \leq 26^\circ$ hin. Die obere Grenze folgt aus den in diesem Energiebereich nicht mehr beobachtbaren $(11)_{[210]}$ -Reflexen bei $(22.4 \pm 0.5^\circ, 39 \pm 8^\circ)$. Weiterhin schiebt sich der $(10)_{[100]}$ -Spot in Übereinstimmung mit den theoretischen Werten von $(24 \pm 2^\circ, 0^\circ)$ auf eine Winkelposition von

($25 \pm 4^\circ, 2 \pm 5^\circ$). Die energetische Abhängigkeit der Winkelkoordinaten (φ, θ) der nachgewiesenen $(10)_{[3\pm 10]}$ bzw. $(11)_{[2\pm 10]}$ -Reflexe im Vergleich zu den experimentell bestimmten Beugungswinkeln fasst Abb. 4.12 zusammen.

Da die geringen Zählraten von weniger als 500 cts/s bei höheren Elektronenenergien hohe

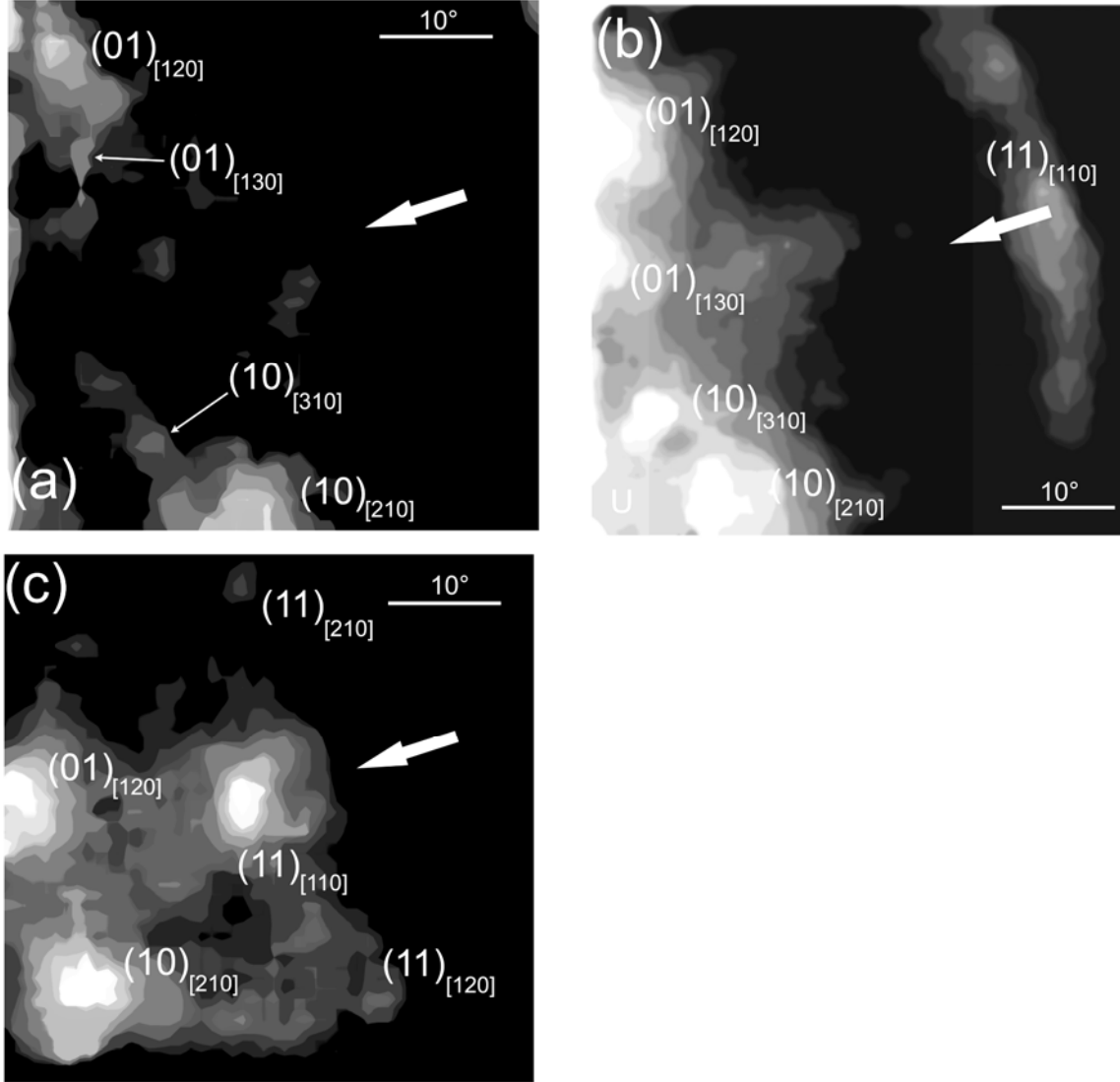


Abb. 4.14: Raumwinkelaufgelöste Winkelverteilung emittierter Elektronen für eine Detektionsenergie von 20 ± 3 eV (a), 32 ± 5 eV (b), 49 ± 6 eV (c), nach Untergrundabzug von ca. 70 % der Maximalintensität, Anregung: 25 keV $\text{He}^+ \parallel [110]$, $\phi_{\text{in}} = 1.6^\circ$

Integrationszeiten bedeuten, wurde zur Anregung höherenergetischer Elektronen bei identischer Streugeometrie ein 29 keV H^+ -Strahl verwendet. Die erhöhte Ionengeschwindigkeit gestattet eine höhere binäre Anregung von Fermielektronen ($E_{\text{max}} \approx 100 \text{ eV}$).

Der Ewaldkonstruktion entsprechend kann unter diesen Anregungsbedingungen der in den Detektionsbereich hineinwandernde $(20)_{[100]}$ -Reflex (theo.: $(6 \pm 4^\circ, 0^\circ)$) im Energieintervall von 105 ± 7 eV mit $(4 \pm 5^\circ, 0^\circ)$ nachgewiesen werden (Abb. 4.13). In den zur Ionenstrahlrichtung

symmetrischen bandartigen Intensitätsstrukturen treten Überhöhungen sowohl in der Nähe der $(2\pm1)_{[100]}$ -Reflexe bei $(29\pm1^\circ, 76\pm4^\circ)$ als auch im Bereich des weitgehend aus dem Detektionsbereich herausgeschobenen $(10)_{[100]}$ -Reflexes bei $(36\pm1^\circ, 0^\circ)$ auf.

Die azimutale Drehung des Cu(001)-Kristalls um 45° gestattet eine vornehmlich entlang der $[11]$ -Oberflächenrichtung induzierte Elektronenanregung. Dieser Änderung der Ionenstrahlrichtung wird in der Ewaldkonstruktion durch eine adäquate Rotation des reziproken Gitters

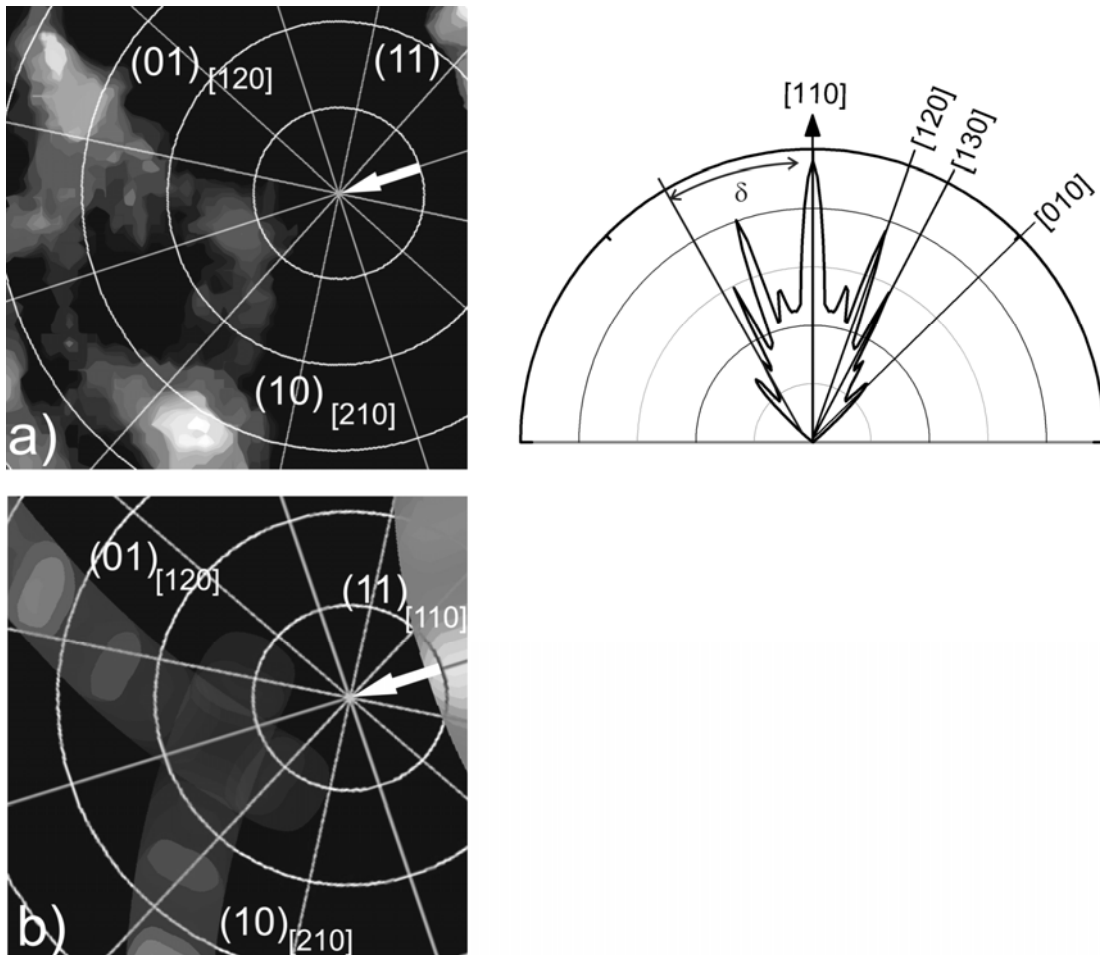


Abb. 4.15: rechts: Polarplot angeregter 32 ± 3 eV Elektronen (entspricht einer Detektionsenergie von 20 ± 3 eV) mit Wellenvektoren parallel zur Oberfläche, zur Anpassung an die IILEED-Messungen müssen erhöhte Anregungen entlang niederindizierter Kanäle angenommen werden links: (a) Raumwinkelverteilung emittierter Elektronen mit einer Detektionsenergie von 20 ± 3 eV, nach Untergrundabzug von 60 % der Maximalintensität ; (b) dazugehörige Berechnung der Winkelpositionen gebeugter Elektronen mittels der rechts dargestellten angepassten Winkelverteilung angeregter Elektronen

entsprochen. Für eine Detektionsenergie von 20 ± 3 eV sind allein für angeregte Elektronen entlang des $[11]$ -Kanals keine Beugungsreflexe innerhalb des Detektionsbereichs zu erwarten, da sowohl der in der Streuebene liegende $(11)_{[110]}$ -Spot mit $(17\pm2^\circ, 180^\circ)$ als auch die $(01)_{[110]}$ bzw. $(10)_{[110]}$ -Reflexe mit $(66\pm4^\circ, \pm33\pm3^\circ)$ außerhalb liegen. Allerdings sorgen auch hier Elektronenanregungen entlang der $[210]$ ($\delta=18.43^\circ$) bzw. $[310]$ ($\delta=26.56^\circ$)-Kanalrichtungen für IILEED-Reflexe, die innerhalb des Beobachtungswinkels zu finden sind. (Die angegebenen Öffnungs-

winkel δ beziehen sich grundsätzlich auf die jeweilige primäre Anregungsrichtung des Ionenstrahls).

So können die symmetrisch zur Strahlachse im Randbereich auftretenden Intensitäten bei $(32 \pm 5^\circ, 40 \pm 6^\circ)$ dem $(10)_{[210]}$ bzw. $(01)_{[120]}$ -Spot mit $(34^\circ, \pm 40 \pm 5^\circ)$ zugeordnet werden (Abb. 4.14 (a)). Das Auftreten des in Abb. 4.11 (a) in der Streuebene liegenden $(10)_{[100]}$ -Reflexes setzt für die $[11]$ -Ionenstrahlrichtung (Abb. 4.14 (a)) einen Anregungswinkel von mindestens $\delta = \pm 45^\circ$ voraus. In diesem Fall würde der um $\theta = \pm 45^\circ$ gedrehte $(10)_{[100]}$ bzw. der $(01)_{[010]}$ -Reflex bei $(10^\circ, \pm 45^\circ)$ in Abb. 4.14 (a) zu erwarten sein. Zu den vergleichsweise hohen Intensitäten des $(10)_{[210]}$ -Spots sind, insbesondere nach einem zu Abb. 4.11 (a) adäquaten Untergrundabzug von 70 % der Maximalintensität, die $(10)_{[100]}$ -Reflexe kaum vorhanden. Ansatzweise können in dieser Darstellung noch die $(10)_{[310]}$ bzw. $(01)_{[130]}$ -Spots (theo.: $(25^\circ, 27 \pm 7^\circ)$) identifiziert werden,

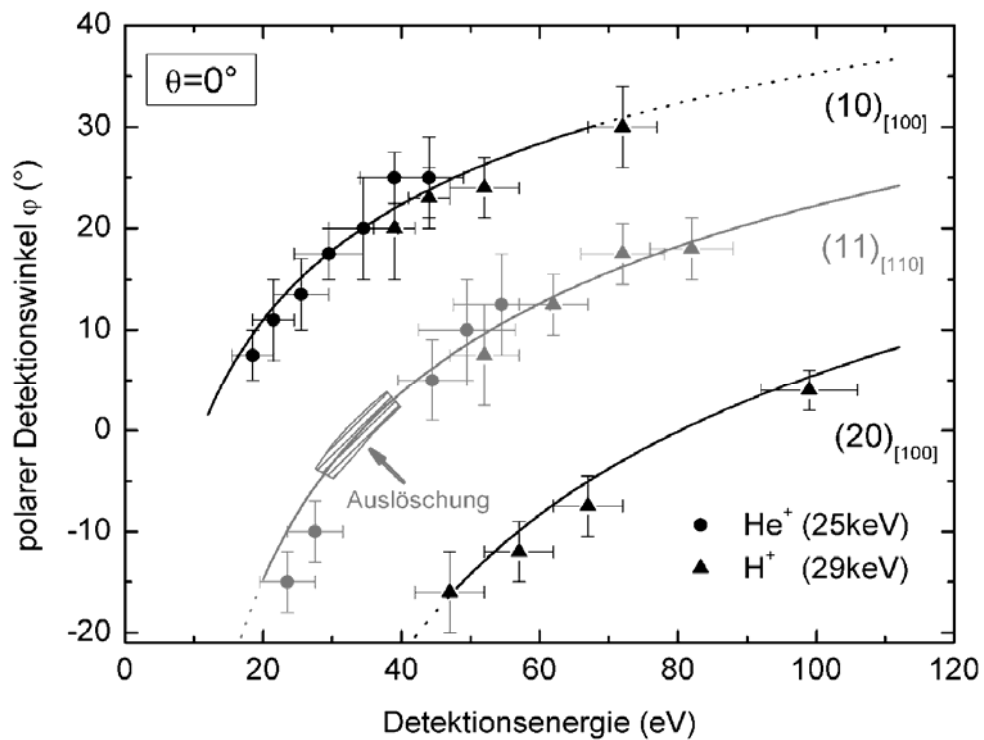


Abb. 4.16: Vergleich berechneter und gemessener polarer Beugungswinkel der $(10)_{[100]}$ - und $(20)_{[100]}$ -Reflexe bei der Ionenstreuung $\parallel [100]$ -Gitterrichtung und des $(11)_{[110]}$ -Reflexes bei der Ionenstreuung $\parallel [110]$ -Gitterrichtung: der $(11)_{[110]}$ -Reflex wird im Bereich senkrechter Emission ($\varphi \approx 0^\circ$) ausgelöscht.

woraus ein zur $[10]$ -Streuung vergleichbarer effektiver Anregungswinkel von $\delta_{\max} \approx \pm 30^\circ$ folgt. Allerdings können durch einen reduzierten Untergrundabzug symmetrisch zur Strahlachse sowohl im Randbereich als auch zum Detektionszentrum hin verlaufende Intensitätsbänder beobachtet werden (Abb. 4.15 (a)), was auf geringe Anteile gebeugter Elektronen hindeutet, die

weitaus größere Anregungswinkel von bis zu $\delta=45^\circ$ aufweisen. Unter der Annahme, dass alle angeregten Elektronen innerhalb des betrachteten Energieintervalls mit Wellenvektoren parallel zur Oberfläche die gleiche Wahrscheinlichkeit besitzen, gebeugt und anschließend emittiert zu werden, kann prinzipiell aus den auftretenden IILEED-Reflexen auf die Winkelverteilung angeregter Kristallelektronen geschlossen werden. Eine solche an die Messung angepasste Winkelverteilung angeregter Elektronen innerhalb der Kristalloberfläche zeigt der Polarplot in Abb. 4.15 rechts. Die in Strahlrichtung maximale Kosinusverteilung angeregter Elektronen [PU03] wurde mit der aus den Messungen folgenden erhöhten Anregungswahrscheinlichkeit entlang niederindizierter Richtungen überlagert.

Über die Abschätzung des effektiven Anregungskonus hinausgehende quantitative Aussagen zur winkelabhängigen Kristallelektronenanregung sind auf der Basis der mit dem SPA-LEED aufgenommenen IILEED-Bilder, insbesondere wegen der apparativbedingten geringen Energieauflösung, nicht möglich. Die hier gemachte einfache empirische Anpassung und Simulation soll vielmehr die prinzipielle Möglichkeit verdeutlichen, aus der Analyse ioneninduzierter Beugungserscheinungen auf den sonst nur schwer zugänglichen Elektronenanregungsprozess innerhalb der Oberfläche zu schließen.

Die aus der Anregungsverteilung in Abb. 4.15 rechts in Verbindung mit der modifizierten Ewaldkonstruktion für Detektionsenergien von 20 ± 3 eV resultierende Winkelverteilung gebeugter Elektronen zeigt Abb. 4.15 (b). Wesentliche Charakteristika des experimentellen Befundes können durch die Simulation nachvollzogen werden. Insbesondere die von den $(10)_{[210]}$ -Reflexen ausgehenden ins Detektionszentrum einlaufenden Intensitätsbänder sind erwartungsgemäß auf die Rotation der Ewaldkugel um den Anregungswinkel $\pm\delta$ zurückzuführen. Die in der Streuebene bei $(13\pm 2^\circ, -2\pm 4^\circ)$ auftretende Intensitätsüberhöhung ist kein Spot sondern resultiert aus der Überlagerung des (10) -und (01) -Reflexbandes. Die polaren Breiten der Reflexbänder folgen aus dem endlichen Energieintervall (hier: 17 eV bis 23 eV), wobei vereinfachend eine innerhalb des Intervalls konstante Beugungsintensität vorausgesetzt wurde. Da aber, wie gezeigt, die Elektronenintensität mit zunehmender Energie eher exponentiell abfällt, werden in der Simulation die Intensitäten höherenergetischer Elektronen überschätzt. Das erklärt die Diskrepanz eines in der Simulation schon deutlich erkennbaren $(11)_{[110]}$ -Reflexes, wohingegen die Messung nur ansatzweise das einlaufende (11) -Reflexband zeigt. Bei Erhöhung der Detektionsenergie wandert das (11) -Intensitätsband mit dem $(11)_{[110]}$ -Reflex in Ionenstrahlrichtung. Bei einer Detektionsenergie von 35 eV entspricht k_{in} dem reziproken Gittervektor $g_{11}=1.74 \text{ \AA}^{-1}$, verbunden mit einem senkrecht zur Oberfläche auftretenden $(11)_{[110]}$ -Reflex. Obwohl experimentell dieser Reflex entsprechend den theoretischen Vorhersagen mit zunehmender Detektionsenergie entlang der Strahlrichtung in den Detektionsbereich wandert, können speziell in

Richtung der Oberflächennormalen keine Beugungsintensitäten nachgewiesen werden. Statt des im Energiebereich von 32 ± 5 eV (Abb. 4.14 (b)) zu erwartenden $(11)_{[110]}$ -Reflexes bei $(-2 \pm 4^\circ, 0^\circ)$ werden nur die rückwärtigen Ausläufer des Reflexes bei $(-9 \pm 3^\circ, 0^\circ)$ gemessen. Zusätzlich zeigt sich entgegen der berechneten bogenartig rückwärtig geöffneten Form des (11) -Intensitätsbandes eine eher in Strahlrichtung geöffnete Struktur (vgl. auch Messung und Simulation in Abb. 4.21). Bei Detektionsenergien größer als 42 eV formiert sich der $(11)_{[110]}$ -Reflex bei einer Winkelposition von $(5 \pm 3^\circ, 0^\circ)$ wieder und weist dann die beugungstheoretische $\varphi(E)$ -Abhängigkeit auf (Abb. 4.16).

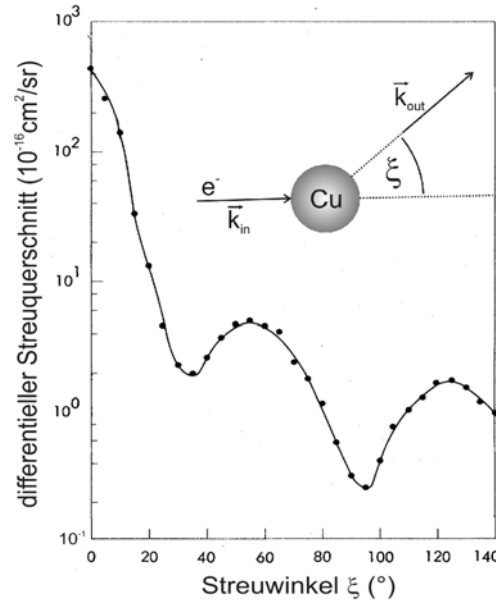


Abb. 4.17: experimentell bestimmter differentieller Wechselwirkungsquerschnitt für die elastische Streuung von Elektronen mit einer Energie von $E = 60$ eV an Cu-Atomen, aus [WT74]

Abb. 4.17 zeigt Messungen zum Wechselwirkungsquerschnitt bei der elastischen Elektronenstreuung an Cu-Atomen in Abhängigkeit vom Streuwinkel ξ (aus [WT74]). Der nicht monotone Verlauf des differentiellen Streuquerschnitts weist ein relativ scharfes Minimum im Bereich von $\xi \approx 90^\circ$ auf, d.h., es wird ein deutlich geringerer Anteil an Elektronen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der einfallenden Elektronenwelle elastisch gestreut. Da auch der für die ioneninduzierte Elektronenbeugung zugrunde liegende Prozess einer elastischen Elektron-Atom-Streuung entspricht, könnte der reduzierte Streuquerschnitt senkrecht zu \vec{k}_{in} die Ursache für die generell nicht beobachtbaren Beugungsintensitäten in Richtung der Oberflächennormalen ($\varphi = 0^\circ \pm 5^\circ$) sein (Auslöschungsbereich in Abb. 4.16, siehe auch Abb. 4.21).

Abb. 4.14 (c) zeigt sowohl den $(11)_{[110]}$ -Spot im Energiebereich (49 ± 6) eV bei $(10 \pm 4^\circ, 0 \pm 2^\circ)$ als auch die auf dem (11) -Reflexband liegenden $(11)_{[210]}$ bzw. $(11)_{[120]}$ -Spots.

Analog zur Diskussion der IILEED-Winkelverteilungen für die $[10]$ -Ionenstrahlrichtung weisen die in Abb. 4.14 (b), (c) auftretenden zusätzlichen $(10)_{[210]}$ -, $(10)_{[310]}$ -, sowie $(11)_{[210]}$ -Reflexe

auf adäquate Öffnungswinkel der Anregungskonen hin, d.h. $\delta \approx \pm 30^\circ$ für den Energiebereich $32 \pm 5 \text{ eV}$ und $\delta \approx \pm 20^\circ$ für $49 \pm 5 \text{ eV}$.

Die in guter Übereinstimmung mit den Beugungsberechnungen stehende Abhängigkeit des azimuthalen Detektionswinkels der $(10)_{[210]}$ bzw. $(01)_{[120]}$ -Intensitäten von der Detektionsenergie zeigt Abb. 4.18 links. Zur Untersuchung der $\phi(E_{\text{det}})$ -Abhängigkeit des $(11)_{[110]}$ -Reflexes (Abb. 4.16) für Detektionsenergien größer als 60 eV erfolgte die Anregung der Kristallelektronen durch streifend einfallende 29 keV H^+ -Ionen.

Abb. 4.18 rechts zeigt die 2D-Emissionsverteilung H^+ -angeregter Elektronen (Strahlrichtung $\parallel [110]$) für Energien von $55 \pm 6 \text{ eV}$ nach einem Untergrundabzug von 70 % der Maximalintensität. Im Gegensatz zu der bei vergleichbarer Energie aufgenommenen Intensitätsverteilung He^+ -angeregter Elektronen (Abb. 4.14 (c)) zeigen sich bei der H^+ -induzierten Elektronenemission, abgesehen von dem in primärer Anregungsrichtung liegenden $(11)_{[110]}$ -Spots, keine weiteren Reflexe. Insbesondere die in Abb. 4.14 (c) am Detektionsrand deutlich zu erkennenden $(10)_{[210]}$ -Beugungsspot bei $(33 \pm 5^\circ, \pm 17 \pm 5^\circ)$ (theo.: $35 \pm 1^\circ, \pm 14 \pm 4^\circ$) sind im Falle der H^+ -induzierten Winkelverteilung nicht detektierbar, was auf einen im Vergleich zur He^+ -Streuung schmalere

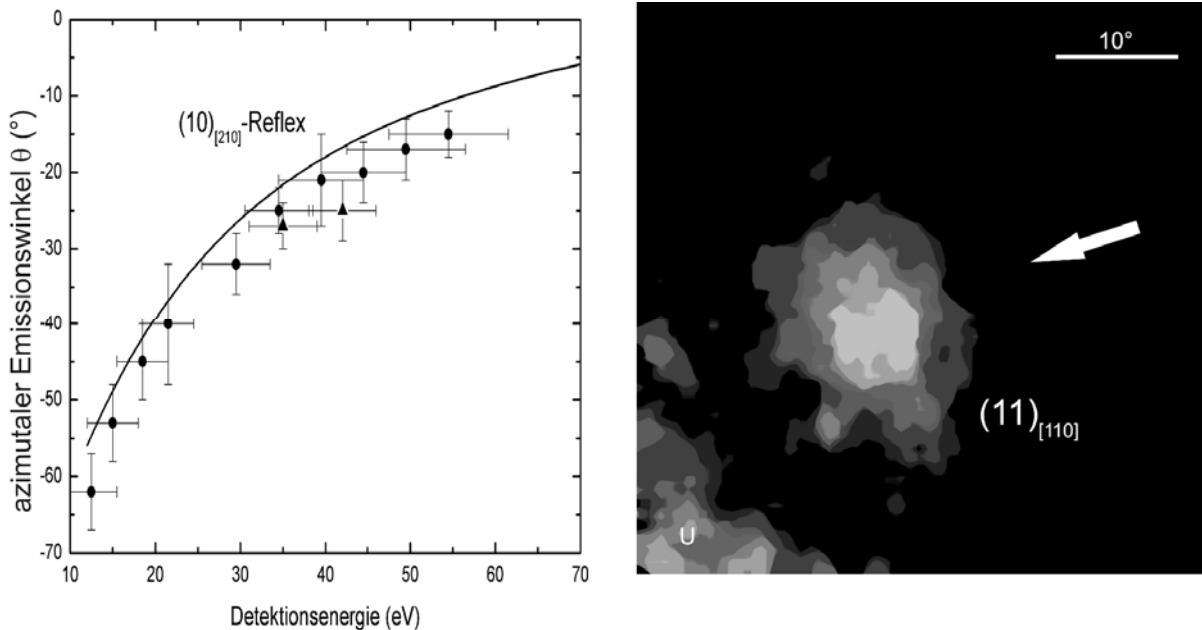


Abb. 4.18: Vergleich des berechneten und gemessenen azimuthalen Detektionswinkels des $(10)_{[210]}$ -Reflexes (aus Abb. 4.14) für steigende Detektionsenergien. Vergleichbare Übereinstimmung gilt nur mit anderem Vorzeichen auch für den $(01)_{[120]}$ -Reflex, rechts: Raumwinkelverteilung emittierter Elektronen mit einer Detektionsenergie von $55 \pm 6 \text{ eV}$, nach Untergrundabzug von 70 % der Maximalintensität, im Vergleich zu Abb. 4.14 (c) wurde hier mit 29 keV H^+ -Ionen $\parallel [110]$ -Gitterrichtung angeregt

Anregungskegel hindeutet. Aufgrund fehlender Beugungsintensitäten im Winkelbereich von $(16^\circ, \pm 52^\circ)$, die auf den $(11)_{[230]}$ -Reflex hinwiesen, kann für den Fall der H^+ -Anregung ein Öffnungswinkel des Anregungskonus von $0 < \delta_{\text{max}} < 11^\circ$ für Detektionsenergien von $55 \pm 5 \text{ eV}$ abge-

schätzt werden.

Unter der Annahme einer durch den Ionenstreuprozess verursachten anisotropen Winkelverteilung angeregter Elektronen in der Oberfläche sind mit Hilfe einfacher beugungstheoretischer Grundlagen in Form einer modifizierten Ewaldkonstruktion sowohl die Winkelposition experimentell auftretender reflexartiger Elektronenintensitäten in der Emissionsverteilung als auch deren Abhängigkeit von der gewählten Detektionsenergie nachvollziehbar. Aus den Emissionswinkeln der Beugungsreflexe, deren Beitrag zur raumwinkelabhängigen Gesamtintensität für den Fall axialer Ionenstreuung im Bereich von 10 %-30 % liegt, kann auf eine erhöhte Elektronenanregung entlang niederindizierter Oberflächenkristallrichtungen geschlossen werden. In Richtung der Oberflächennormalen werden keine Beugungsintensitäten gemessen. Eine mögliche Ursache dafür liegt im streuwinkelabhängigen Wechselwirkungsquerschnitt bei der elastischen Elektron-Atom-Streuung sein, der für Streuwinkel im Bereich von 90° ein Minimum aufweist. Die Analyse beugungsbedingter Intensitäten in der Emissionsverteilung gestattet Rückschlüsse auf den durch die Ionenstreuung initiierten elektronischen Anregungsprozess an der Oberfläche.

4.5 Azimutale Abhängigkeit der IILEED-Reflexe

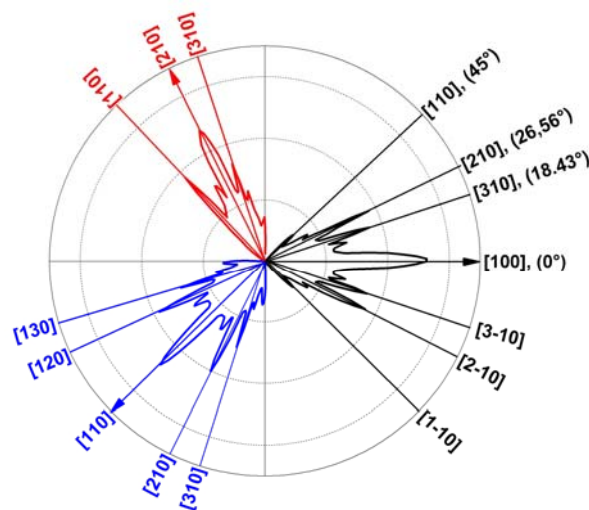


Abb. 4.19: Winkelverteilung angeregter 44 ± 5 eV Elektronen (entspricht einer Detektionsenergie von 32 ± 5 eV) innerhalb der Oberfläche für eine Ionenstreurichtung (primäre Anregungsrichtung) entlang der $[100]$, der $[110]$ und der $[210]$ -Kristallrichtung. Die Winkelverteilung wurde für die Simulation der in Abb. 4.20 dargestellten IILEED-Reflexe verwendet.

Im Folgenden wird die Abhängigkeit der IILEED-Reflexe vom azimutalen Einfallswinkel des anregenden Ionenstrahls untersucht. Obwohl schon durch die im vorigen Abschnitt diskutierten Emissionswinkelverteilungen für die $[10]$ -und $[11]$ -Ionenstreurichtungen eine eindeutige Korrelation zwischen primärer Anregungsrichtung und den auftretenden Intensitätsreflexen hergestellt wurde, soll hier unmittelbar die von der Rotation der Oberfläche ausgehende Drehung der

beobachteten Beugungsreflexe verifiziert werden. Allerdings zeigt sich bei kontinuierlicher Drehung des Targets in azimutale Winkelbereiche planarer Ionengitterführung (Randomrichtungen) ein deutlicher Anstieg des Anteils inelastisch emittierter Elektronen am Gesamtsignal (siehe Abb. 4.22), der eine eindeutige Separation elastisch gebeugter Intensitäten erschwert.

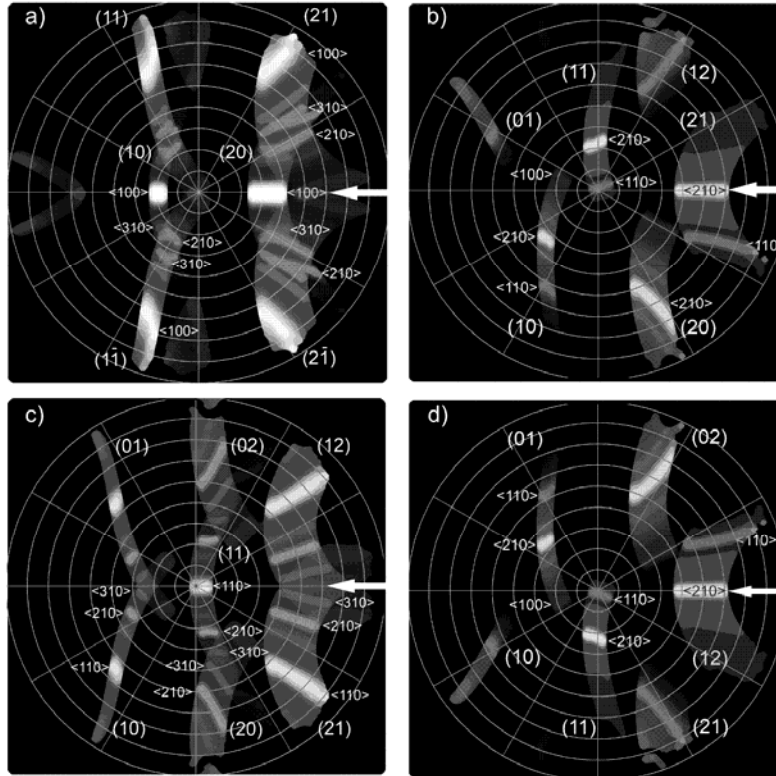


Abb. 4.20: mittels angepasster Anregungsverteilung (Abb. 4.19) und Ewaldkonstruktion berechnete 2d-Intensitätsverteilung elastisch gebeugter Elektronen bei einer Detektionsenergie von 32 ± 5 eV für eine Ionenstrahlrichtung entlang der [100]-(a), der [210]-(b), der [110]-(c) und der [120]-(d)-Ionenstrahlrichtung, das Polardiagramm umfasst den gesamten Halbraum, d.h. $\varphi=0..90^\circ$ und $\theta=0..360^\circ$

Dementsprechend wurden bei konstant gehaltener Detektionsenergie von 32 ± 5 eV zusätzlich zu den primären Anregungsrichtungen entlang des [100] und [110]-Oberflächenkanals noch die Streurichtungen parallel zum [210] bzw. [120]-Kanal untersucht, für die wegen vergleichbarer Anregungsverhältnisse bei axialer Ionengitterführung eine Separation elastisch gebeugter Emissionsanteile möglich ist. Auf der Basis einer an die IILEED-Messungen angepassten Verteilung angeregter Elektronen (Abb. 4.19), d.h. genauer eine in Strahlrichtung maximale Kosinusverteilung mit erhöhter Anregung entlang niederindizierter Oberflächenrichtungen, zeigt Abb. 4.20 die daraus resultierende raumwinkelaufgelöste Intensitätsverteilung gebeugter Elektronen. Zum einen verdeutlicht die simulierte Intensitätsverteilung in Abb. 4.20, dass die Entstehung von Beugungsreflexen nicht auf einen engen Winkelbereich senkrecht zur Oberfläche beschränkt ist, sondern sich innerhalb des Austrittskegels über den gesamten Halbraum erstrecken kann.

Zum anderen wird hier die von der Oberflächendrehung initiierte Rotation der IILEED-Reflexe

und Intensitätsbänder demonstriert. Eine Änderung des azimuthalen Ioneneinfallswinkels ϑ vom [100]-Kanal bei $\vartheta=0^\circ$ (Abb. 4.20 a) zur [210]-Kristallachse bei $\vartheta=26.56^\circ$ (Abb. 4.20 b) hat eine azimuthale Drehung der Reflexbänder im Uhrzeigersinn (deutlich zu erkennen am (21)-Intensitätsband in Abb. 4.20 a \rightarrow b) und eine Änderung der primären Anregungsrichtung, verbunden mit dem Wechsel erhöhter Reflexintensitäten innerhalb eines Intensitätsbandes, zur Folge. So wechselt z.B. die maximale Beugungsintensität innerhalb des (10)-Intensitätsbandes vom $(10)_{[100]}$ -Reflex (Abb. 4.20 a) nach der Targetdrehung um 26.56° auf den $(10)_{[210]}$ (Abb. 4.20 b) und bei weiterer Drehung um 18.44° auf den $(10)_{[110]}$ -Spot (Abb. 4.20 c) bei gleichzeitiger Raumwinkeldrehung des ganzen Reflexbandes. Für die Simulation der Beugungsintensitäten wurde analog zum vorherigen Abschnitt eine für alle Raumwinkelbereiche gleiche Beugungs- und Emissionswahrscheinlichkeit vorausgesetzt, so dass die auftretenden Intensitätsunterschiede im berechneten Beugungsbild ausschließlich aus der anisotropen Elektronenanregung innerhalb der Oberfläche folgen (Abb. 4.19). Auch wurde der streuwinkelabhängige elastische Wechselwirkungsquerschnitt (Abb. 4.17) für die Bestimmung der Beugungsintensitäten nicht mitberücksichtigt.

Abb. 4.21 stellt die simulierten IILEED-Intensitäten innerhalb des Detektionswinkels den 25 keV He^+ -induzierten Winkelverteilungen emittierter 32 ± 5 eV Elektronen nach einem Untergrundabzug von 70 % der Maximalintensität gegenüber. Grundsätzlich zeigen die Emissionsverteilungen, deren primäre Anregungsrichtung mit einer Spiegelsymmetrieachse des reziproken Gitters zusammenfällt (Abb. 4.21 a, c), ebenfalls zur Strahlrichtung, d.h. parallel zum [100] bzw. [110]-Kanal, bezogene spiegelsymmetrische Beugungsintensitäten. Wohingegen die Intensitäten für die [210]- und [120]-Strahlrichtungen (Abb. 4.21 b, d) erwartungsgemäß asymmetrisch zur Strahlachse auftreten. Die jeweiligen Reflexe in Abb. 4.21 b können in die Reflexe von Abb. 4.21 d durch Spiegelung an der Strahlachse überführt werden. Der azimuthale Drehwinkel ϑ sollte unmittelbar an der Drehung identischer Reflexe verifiziert werden können. So rotiert der $(11)_{[210]}$ -Spot in (a) bei einer Drehung des Targets um $\vartheta=26.6^\circ$ ebenfalls um diesen Winkel (exp.: $27\pm 3^\circ$) im Uhrzeigersinn. Gleichzeitig verschiebt sich bei der Drehung die Intensität aus der Strahlachse in (a) heraus in die mit [210] indizierten Reflexe am Detektionsrand von (b) (siehe auch zugehörige Simulation). Die schwachen Intensitäten im Bereich des $(10)_{[100]}$ -Reflexes (theo.: $(18\pm 3^\circ, 26.6^\circ)$) in (b) deuten auf einen unterhalb des Drehwinkels liegenden Öffnungswinkel des effektiven Anregungskonus hin, der dementsprechend in der Simulation von $\delta_{\text{max}}\approx 30^\circ$ für die [100]- und [110]-Ionenstrahlrichtung (Abb. 4.21 a, c unten) auf $\delta_{\text{max}}\approx 20^\circ$ für die [210]- und [120]-Ionenstrahlrichtung (b, d unten) reduziert wurde (siehe Anregungsfunktion in Abb. 4.19). Den Berechnungen entsprechend kann in (b) auch der $(10)_{[210]}$ -Reflex detektiert werden. Die in der Simulation nicht berücksichtigten elastischen Elektronen-

Atom-Streuquerschnitte führen sowohl in (c) als auch in (b) und (d) zur Reduzierung der senkrecht emittierten $(11)_{[110]}$ -Intensitäten. Insgesamt deuten die sichelartig, ausgeschmierten Intensitäten des durch den Koordinatenursprung laufenden (11) -Reflexbandes in (b), (c) und (d) auf einen relativ großen konzentrischen „Auslöschungsbereich“ um den Koordinatenursprung herum hin. Abgesehen davon ist eine weitere Drehung der Cu-Oberfläche um 18.4° , d.h. von (b) nach (c), unmittelbar mit einer ebensolchen experimentell beobachtbaren Rechtsdrehung des $(10)_{[210]}$ -Reflexes verbunden. Die Gründe für den in diesem Energiebereich nicht registrierbaren $(11)_{[110]}$ -Spot in (c) wurden schon erläutert. Gleichzeitig entsteht symmetrisch zur $(10)_{[210]}$ -

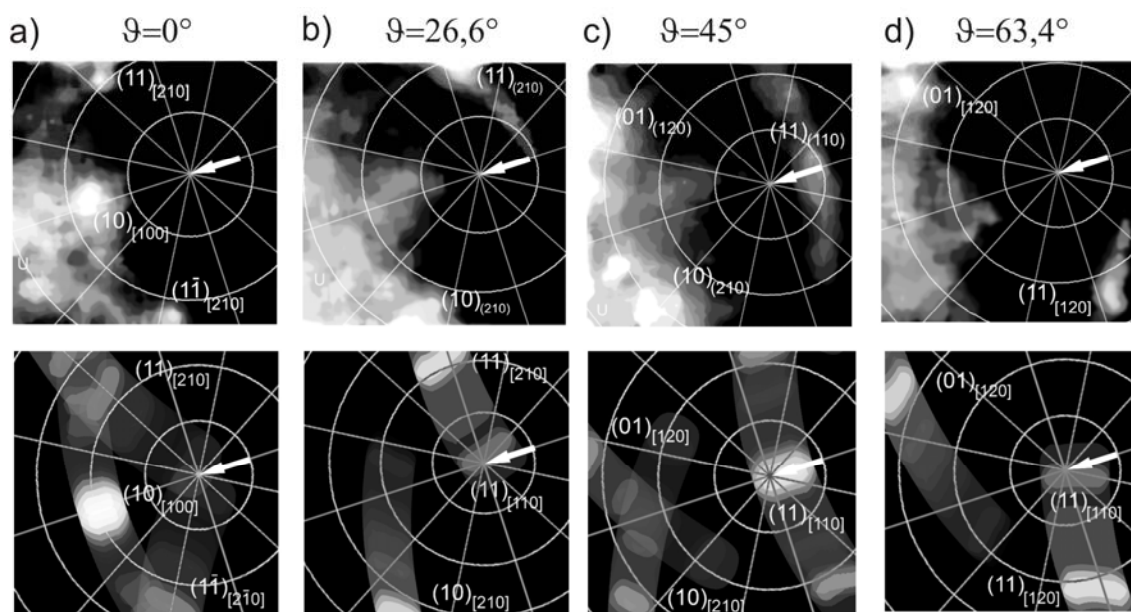


Abb. 4.21: Vergleich gemessener raumwinkel aufgelöster Intensitätsverteilungen (oben) und simulierter Beugungsreflexe (unten) bei einer azimuthalen Drehung der Cu(001)-Oberfläche von 0° (Strahlrtg. \parallel [100] in a) um $9=26,6^\circ$ ([210], b), um $9=45,0^\circ$ ([110], c) und um $9=63,4^\circ$ ([120], d). Eine von (d) ausgehende weitere Drehung um $26,6^\circ$ führt zu (a). Zu beachten ist die der Targetdrehung entsprechende Rotation identischer IILEED-Spots: für (a) nach (b): $(11)_{[210]}$; für (b) nach (c): $(10)_{[210]}$; für (c) nach (d): $(01)_{[120]}$ und letztlich für (d) nach (a) $(11)_{[120]} \equiv (1-1)_{[2-10]}$, die Detektionsenergie entspricht 32 ± 5 eV. Im Unterschied zur Simulation weisen die Messungen (a)-(d) verringerte Beugungsintensitäten bei Emission senkrecht zur Cu(001)-Oberfläche auf ($\varphi=0^\circ$), eine Begründung dafür liefert Abb. 4.17

Intensität der $(01)_{[120]}$ -Reflex, der bei weiterer Drehung des Targets um 18.4° ($9=63.4^\circ$) ebenfalls um diesen Winkel im Uhrzeigersinn rotiert (Abb. 4.21 d). Analog zur Diskussion von (b) gilt hier die in der Simulation nicht berücksichtigte Auslöschung des $(11)_{[110]}$ -Reflexes. Spiegelsymmetrisch zum $(11)_{[210]}$ -Spot in (b) kann in (d) der auftretende $(11)_{[120]}$ -Reflex detektiert werden.

Durch die vierzählige Drehsymmetrie des quadratischen reziproken Gitters wird durch eine weitere Rotation des Targets um 26.6° das Gitter in seine ursprüngliche Position überführt, d.h. von (d) nach (a).

Dies entspricht einer Gesamtdrehung von $\vartheta=90^\circ$. Demzufolge ist der $(11)_{[120]}$ -Spot, bezogen auf

die $[010]$ -Strahlrichtung, identisch mit dem $(1-1)_{[2-10]}$ -Spot, bezogen auf die $[100]$ -Strahlrichtung, so dass auch hier die Targetdrehung unmittelbar an einer ebensolchen Rotation des $(11)_{[120]}$ -Spots (exp.: $28 \pm 3^\circ$) nachvollzogen werden kann. Das über die Symmetrie der Kristalloberfläche korrelierte Auftreten von Elektronenintensitäten, insbesondere die hier gezeigte mit der Oberflächendrehung einhergehende Intensitätsrotation, lässt zweifellos auf einen signifikanten Beitrag (10 %-30 % der in den Winkelbereich emittierten Gesamtintensität)

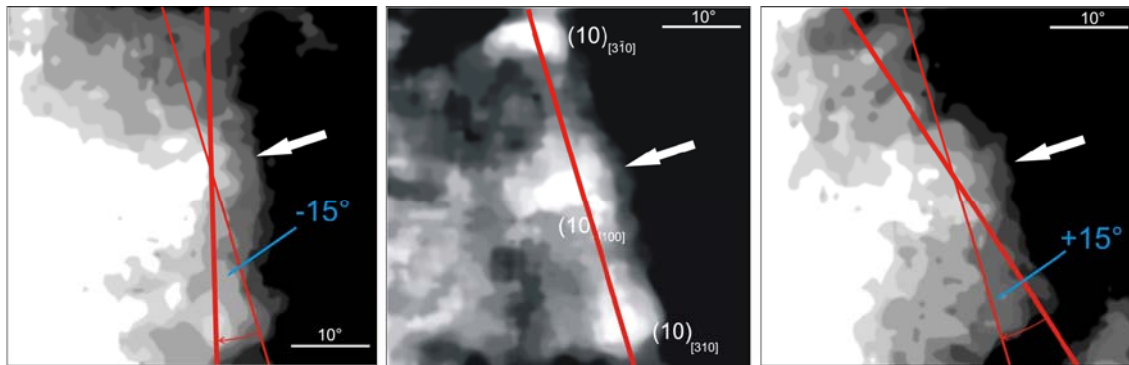


Abb. 4.22: Raumwinkelaufgelöste Winkelverteilung emittierter Elektronen für eine Detektionsenergie von 22 ± 5 eV bei axialer Ionenstreuerichtung \parallel zur $[100]$ -Oberflächenrichtung (mitte) und für zwei zufällige Richtungen nach einer azimuthalen Targetdrehung um $\vartheta = \pm 15^\circ$ (links bzw. rechts)

elastisch gebeugter Elektronen in der ioneninduzierten Elektronenemission schließen. Eine wesentliche Bedingung für die Beugung von Kristallelektronen ist eine effiziente Streuung der primären Elektronenwelle an den einzelnen Atompotentialen. Findet die Elektronenanregung durch Verringerung des polaren Ioneneinfallwinkels oder durch die Wahl planarer Oberflächenstreuung primär oberhalb der ersten atomaren Lage statt, so werden zunehmend quasifreie elektronische Anregungszustände besetzt, die diese Bedingung nicht erfüllen. Dementsprechend zeigt insbesondere die Elektronenemission bei planarer Oberflächengitterführung der Ionen, d.h. bei der streifenden Streuung außerhalb eines niederindizierten Oberflächenkanals, eine deutlichen Reduktion der elastisch gebeugten Anteile. Eine eindeutige Separation der Beugungsreflexe vom inelastischen Sekundärelektronenuntergrund ist unter diesen Streubedingungen nicht möglich. Trotzdem weisen die Konturen der winkelaufgelösten Emissionsintensität auch hier auf gebeugte und direkt emittierte Anteile hin. So zeigt Abb. 4.22 die zweidimensionale Intensitätsverteilung für 22 ± 5 eV Elektronen sowohl in axialer Streugeometrie parallel zur $[100]$ -Oberflächengitterrichtung (Mitte), als auch bei planarer Oberflächenstreuung, nach einer azimuthalen Drehung der Oberfläche um $\vartheta = +15^\circ$ (links), bzw. $\vartheta = -15^\circ$ (rechts).

Zum einen kann über die beugungsbedingten Intensitätskonturen (markiert durch breite rote Linien in Abb. 4.22) die korrelierte Rotation des reziproken Oberflächengitters nachgewiesen werden. Andererseits deuten die durch die Drehung initiierten Intensitätsänderungen im Win-

kelbereich des $(10)_{[310]}$ -Reflexes auf elastisch gebeugte Anteile auch bei planarer Oberflächen-gitterführung hin. Diese im Vergleich zur axialen Streugeometrie reduzierten Anteile liegen unterhalb von 10% der in den Detektionsbereich fallenden Maximalintensität.

Die Auswirkungen der nachgewiesenen Beugungsreflexe auf die energieaufgelösten Elektronenspektren sind in Abb. 4.23 gezeigt. Zur Aufnahme dieser Spektren wurde das SPA-LEED

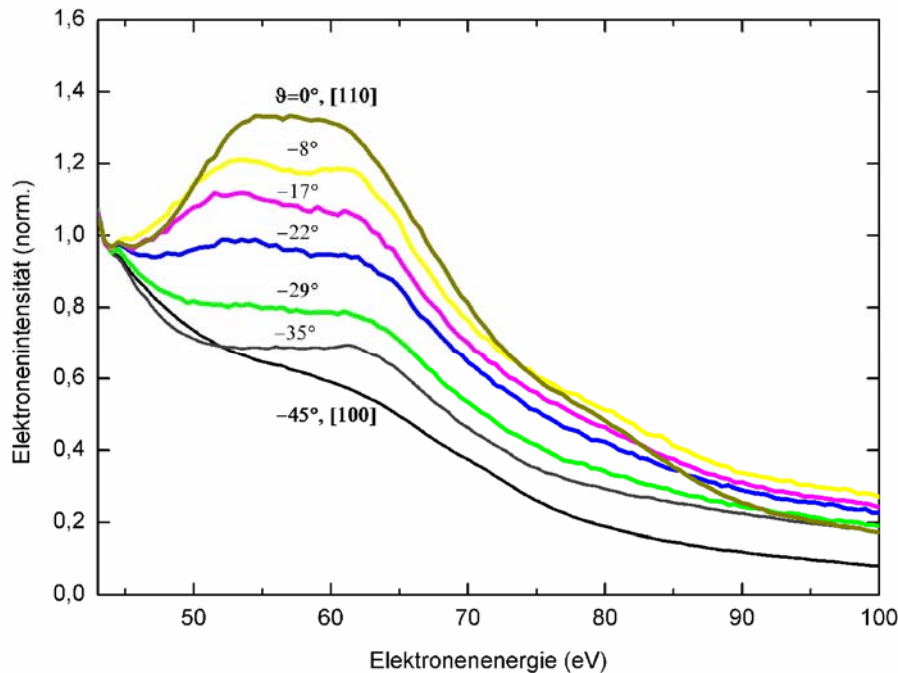


Abb. 4.23: Elektronenspektren erzeugt durch streifend an Cu(001) gestreute 25 keV H^+ -Ionen bei unterschiedlichen azimutalen Einfallswinkeln θ bezogen auf die $[110]$ -Kristallrichtung. Die Spektren wurden mit einem Energieanalysator (CLAM2) aufgenommen, der einen Detektionswinkel von $\varphi_{det}=12^\circ$ (bezogen auf die Oberflächennormalen) in Strahlrichtung aufweist. Der Akzeptanzwinkel des Analysators liegt bei ca. $\pm 3^\circ$. Die Spektren zeigen einen deutlichen Einfluss des $(11)_{[110]}$ -Beugungsreflexes.

durch ein Elektronenspektrometer ersetzt. Der Beobachtungswinkel des Spektrometers ist um 12° zur Oberflächennormalen in Strahlrichtung geneigt (siehe Abb. 3.1), so dass z.B. bei einer primären Anregung entlang des $[110]$ -Kanals der in der Streuebene liegende $(11)_{[110]}$ -Reflex mit zunehmender Detektionsenergie in den Beobachtungswinkel des Spektrometers wandert. Aus der Position des $(11)_{[110]}$ -Reflexes innerhalb des Akzeptanzwinkel des Energieanalysators (hier $\pm 3^\circ$) kann ein kritischer Energiebereich berechnet werden, in dem reflexbedingt erhöhte Intensitäten auftreten sollten. Dieser kritische Energiebereich liegt für den $(11)_{[110]}$ -Reflex zwischen 51 eV und 67 eV. Abb. 4.23 vergleicht die 29 keV H^+ -induzierten Elektronenspektren im kritischen Energiebereich bei unterschiedlichen azimutalen Einfallswinkeln. Ausgehend vom Ionen-einfall parallel zur $[100]$ -Oberflächenrichtung führt die azimutale Rotation des Targets zu einem kontinuierlichen Anstieg der in den kritischen Energiebereich fallenden Elektronenintensität, erreicht ein Maximum beim Einfall parallel zur $[110]$ -Kanalrichtung, um bei fortgesetzter Dre-

hung wieder zu sinken. Die leichte Intensitätsschulter im Energiebereich von 62 eV, die sich auch bei der axialen [100]-Streuung ergibt, kann auf die ioneninduzierte Emission von Cu-MVV-Augerelektronen zurückgeführt werden (Energie des Cu-M_{2,3}VV-Übergangs: 60 eV). Da der Übergang vom axialen Channeling zur planaren Oberflächengitterführung mit einer Verringerung des mittleren Projektil-Targetatom-Abstandes einhergeht, können bei planarer Oberflächengitterführung erhöht Innerschalenionisationen und damit verbunden Augerprozesse angeregt werden [BA93]. Dies führt bei planarer Oberflächengitterführung (Randomstreuung) für Winkelbereiche in der Nähe des [100]-Kanals zu einer Erhöhung des Augersignals. Der bei größeren Rotationswinkeln bis zum Erreichen der [110]-Gitterrichtung auftretende kontinuierliche Anstieg der Intensitäten im kritischen Energiebereich kann allerdings nicht durch Augerprozesse erklärt werden. Vielmehr zeigt sich hier der Einfluss des in den Beobachtungswinkel des Elektronenspektrometers einlaufenden (11)_[110]-Beugungsreflexes. Insbesondere ergeben sich in den Spektren in der Nähe der [110]-Richtung auch bei Randomstreuung nicht zu vernachlässigende Beiträge elastisch gebeugter Elektronen.

Die Drehung der Oberfläche bezogen auf den einfallenden Ionenstrahl führt zu einer entsprechenden Rotation des reziproken Gitters und damit zur Änderung der Emissionswinkel der beobachteten reflexartigen Intensitäten. Dies ist ein eindeutiger Beweis für die beugungsbedingte Ursache dieser Intensitätsüberhöhungen. Die Emissionswinkel dieser über die modifizierte Ewaldkonstruktion und den Anregungskonus beschreibbaren Intensitätsbänder können sich über den gesamten Bereich des Elektronenaustrittskonus erstrecken. Elastisch gebeugte Elektronenanteile wurden auch für den Fall der Randomstreuung sowohl in den Winkelverteilungen als auch in den Energiespektren nachgewiesen. Allerdings führt die Änderung von axialer zu planarer Oberflächengitterführung der anregenden Ionen zu einer deutlichen Reduzierung elastisch gebeugter Anteile. Dieser Effekt dürfte im Zusammenhang mit der bei planarer Oberflächengitterführung reduzierten Anregungstiefe der Elektronen stehen.

4.6 Zusammenfassung

Im energiedispersiven Betrieb eines SPA-LEED-Systems wurde die bei der streifenden Ionenstreuung (25 keV He⁺ bzw. 29 keV H⁺, $\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$) auftretende Raumwinkelverteilung emittierter Elektronen in Abhängigkeit von der Detektionsenergie (15-100 eV) und vom azimutalen Einfallswinkel untersucht. Für die Ionenstreuung entlang niederindizierter Richtungen konnten reflexartige Emissionsintensitäten (10 % - 30 % der Gesamtintensität) in den Winkelverteilungen gemessen werden. Sowohl das Auftreten als auch das energetische und azimutale Verhalten dieser Reflexe ist mit elastischer Beugung und direkter Emission angeregter Elektronen zu verstehen.

Die Streuung von Valenzelektronen am einfallenden Projektil und dadurch initiierte Sekundärelektronenkaskaden führen zu einer räumlichen Verteilung angeregter Elektronenzustände innerhalb der Kristalloberfläche. Dabei wird eine angeregte ebene Welle mit Ausbreitungsrichtung parallel zur Oberfläche innerhalb ihrer mittleren freien Weglänge ($\approx 10 \text{ \AA}$) an einzelnen Atompotentialen gestreut. Dies führt zum einen zu einer deutlichen Dämpfung der Streuamplitude der sich ausbreitenden Primärwelle und zum anderen, durch die feste Phasenbeziehung der entstehenden Streuwellen, zur kohärenten Emission von Elektronen in definierte Winkelbereiche. Die Abklinglänge eines solchen angeregten Blochwellenzustandes im Energiebereich von $32 \pm 5 \text{ eV}$ wurde über die Breite der polaren Winkelverteilung in der Streuebene des Beugungsreflexes zu $8 \pm 2 \text{ \AA}$ bestimmt. Die Winkelpositionen der ioneninduzierten LEED-Reflexe (IILEED) können mit Hilfe einer modifizierten Ewaldkonstruktion und der Winkelverteilung angeregter Elektronen (Anregungskonus) nachvollzogen werden. Sowohl die Abhängigkeit der Beugungswinkel von der Detektionsenergie als auch die mit der Rotation der Oberfläche einhergehende Drehung der IILEED-Spots steht in Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen. Reduzierte Beugungsintensitäten in Richtung der Oberflächennormalen sind über den streuwinkelabhängigen Wechselwirkungsquerschnitt bei der elastischen Elektron-Atom-Streuung nachvollziehbar. Aus der Intensitätsverteilung für Anteile gebeugter Elektronen können Informationen über deren Anregung innerhalb der Kristalloberfläche gewonnen werden. So ist aus den Beugungsreflexen auf eine anisotrope Winkelverteilung angeregter Elektronen in der Cu(001)-Oberfläche, mit erhöhter Elektronenanregung entlang niederindizierter Oberflächengitterrichtungen zu schließen. Weiterhin gestatten die Beugungsintensitäten Rückschlüsse auf den Öffnungswinkel des elektronischen Anregungskonus innerhalb der Kristalloberfläche.

Der Übergang von axialer zu planarer Oberflächengitterführung der einfallenden Ionen führt zu einer deutlichen Reduzierung gebeugter Emissionsanteile, was eine Separation vom inelastisch emittierten elektronischen Untergrund erschwert. Dennoch folgt aus dem azimuthalen Verhalten der 2d-Intensitätsverteilungen und den dazu korrespondierenden energieaufgelösten Elektronenspektren ein beugungsbedingter Emissionsanteil von bis zu 10 % der in den entsprechenden Winkelbereich emittierten Gesamtintensität.

Der an Cu(001) nachgewiesene signifikante Anteil elastisch gebeugter Elektronen an der ioneninduzierten Elektronenemission hat, da eine Verallgemeinerung auf andere einkristalline Metalloberflächen nahe liegt, weitreichende Konsequenzen für die Interpretation von energieaufgelösten Elektronenspektren. So enthalten insbesondere die von Niehaus *et al.* [SZ00] bei streifender Streuung von 6 keV bzw. 4 keV H^+ auf Al(111) aufgenommenen niederenergetischen Elektronenspektren deutliche Hinweise auf den beugungsbedingten Ursprung der „Plasmonschulter“, was dieselben Autoren zu einer Reinterpretation der Daten zugunsten der Beugungs-

hypothese veranlasste [NZ01]. Zum Beispiel führt bei der Streuung parallel zum [110]-Kanal (dichtest gepackte Atomreihe mit einer Kanalbreite von $a=2.48 \text{ \AA}$) die Erhöhung des polaren Detektionswinkels φ entsprechend der Diskussion in Kap. 4.4 zu einer energetischen Verschiebung der Intensitätsschulter. Weiterhin zeigt sich auch hier, dass eine leichte azimutale Drehung

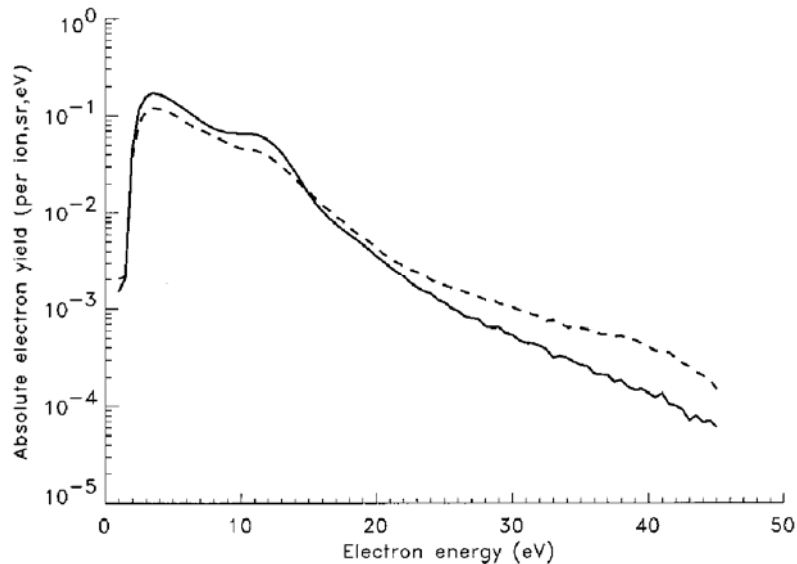


Abb. 4.24: Elektronenenergieverteilung gemessen senkrecht zur Oberfläche, Anregung durch streifend einfallende ($\phi_{in}=5^\circ$) 5 keV H^+ -Projekte auf Al(111) bei Streuung parallel zur dichtgepackten Atomreihe (—) und in Randomrichtung (---), aus [SZ00]

der Oberfläche in eine zufällige Streurichtung eine Reduzierung der „Plasmonschulter“ zur Folge hat (Abb. 4.24).

Entlang der [110]-Richtung angeregte und elastisch gebeugte Elektronen werden bei einer Detektionsenergie von $E_{det} \approx 9.6 \text{ eV}$ senkrecht zur Oberfläche emittiert (hier für Al(111): $V_0=14.9 \text{ eV}$ [AM76]), was alternativ zum Konzept der Volumen-Plasmonanregung die in den Elektronenspektren auftretende Struktur bei ca. 10 eV bei senkrechter Beobachtungsrichtung begründet.

Generell sind energieaufgelöste Elektronenspektren bei festem Detektionswinkel (φ, θ) zur Identifizierung möglicher Beugungsanteile aus folgenden Gründen ungeeignet:

- (1) Es kann aus dem unveränderten Intensitätssignal bei azimuthaler Drehung des Targets nicht sicher Beugung als Signalursache ausgeschlossen werden, da der Anregungskonus, insbesondere bei Metallen mit isotroper Anregungsverteilung, zu einem über den gesamten Halbraum ausgeschmierten System von breiten Intensitätsbändern führt (siehe Abb. 4.20). Vor allem wenn der Öffnungswinkel des Anregungskonus δ im Bereich des halben Drehsymmetriewinkels der entsprechenden einkristallinen Metalloberfläche (für

Al(111): $\vartheta_{\text{sym}} = 60^\circ$, Cu(001): $\vartheta_{\text{sym}} = 90^\circ$) liegt, ist eine Verifizierung gebeugter Intensitätsanteile im Elektronenspektrum durch alleinige Änderung der primären Anregungsrichtung, wie in Abb. 4.23 gezeigt, kaum möglich. Eine unter Berücksichtigung aller theoretisch auftretenden Reflexbänder gewählte Änderung des Detektionswinkels sollte hingegen eine Identifizierung erhöhter gebeugter Anteile ermöglichen.

- (2) Die beugungsbedingten Intensitätsbänder ändern in Abhängigkeit von der Detektionsenergie ihre Raumwinkelposition verbunden mit Verschiebungen der in den Akzeptanzwinkel des Energieanalysators fallenden Beugungsanteile. Dieser Effekt sollte im Allgemeinen zu einer energetischen Verbreiterung der Strukturen in den Energiespektren führen. Diese Verbreiterung hängt sowohl vom Detektions- und Akzeptanzwinkel des Energieanalysators als auch vom detektierten Energiebereich ab, z.B. durchläuft das (10)-Beugungsband innerhalb von 11 eV bis 14 eV einen polaren Winkelbereich von $\varphi = \pm 3^\circ$ (zur Oberflächennormalen in Strahlrichtung). Das (20)-Beugungsband dagegen durchläuft diesen Winkelbereich von 70 eV bis 90 eV verbunden mit einer entsprechenden Verbreiterung in den Elektronenspektren. Die signifikante polare Winkelbreite des Reflexbandes selber ($\Delta\varphi \approx 7^\circ$) wurde hier nicht berücksichtigt.

Im Gegensatz zu den weitreichenden theoretischen Konzepten zur kinetischen und potentiellen Plasmonanregung (z.B. [LM96], [RS00], [BD01]) fehlen entsprechende theoretische Grundlagen für mögliche beugungsbedingte Anisotropiebeiträge in den ioneninduzierten Elektronenspektren. Erste erfolgreiche auf Elektronenmehrfachstreuung und Beugung beruhende Ansätze zur Interpretation winkelaufgelöster Sekundärelektronenspektren angeregt durch senkrecht einfallende 10-100 keV Edelgasionen auf Ag(111) wurden in [NM78] unternommen, aber in der Folgezeit nicht weiterentwickelt. Allerdings scheint die Adaption der theoretischen Grundlagen der Photoelektronenbeugung (PhD) auf ioneninduzierter Beugungsphänomene viel versprechend. So wechselwirkt bei PhD das Wellenfeld des angeregten Photoelektrons elastisch mit den umliegenden Atomen. Die so erzeugten Streuwellen überlagern sich kohärent, so dass aus den entstehenden Beugungsreflexen Rückschlüsse auf die atomare Nahordnung gezogen werden können. Im Gegensatz zu der üblicherweise verwendeten elementspezifischen Innerschalenphotoelektronenanregung und der damit verbundenen Lokalisierung der Primärelektronen an Atompositionen des Gitters, entspricht IILEED eher dem Fall der delokalisierten Valenzelektronenanregung (die korrektere Entsprechung sind Elektronenbeugungseffekte bei der ultravioletten Photoemission [HÜ95]). Da bei IILEED wie auch bei PhD die Generierung von Partialwellen nur in der unmittelbaren Nähe der Primäranregung möglich ist, wird auch hier das entstehende Beugungsbild (z.B. Abb. 4.11 a) von der Nahordnung der Atome bestimmt. Zur Bestätigung dieser aus

den polaren Reflexbreiten stammenden Schlussfolgerung wurden zusätzlich Emissionswinkelverteilungen bei der Streuung an der rauen, d.h. nicht ausgeheilten, Cu(001)-Oberfläche aufgenommen (Abb. 4.25). Abgesehen vom erhöhten Untergrundsignal treten trotz der erheblichen Defektdichte und der verringerten Terrassenbreite an der Oberfläche weiterhin

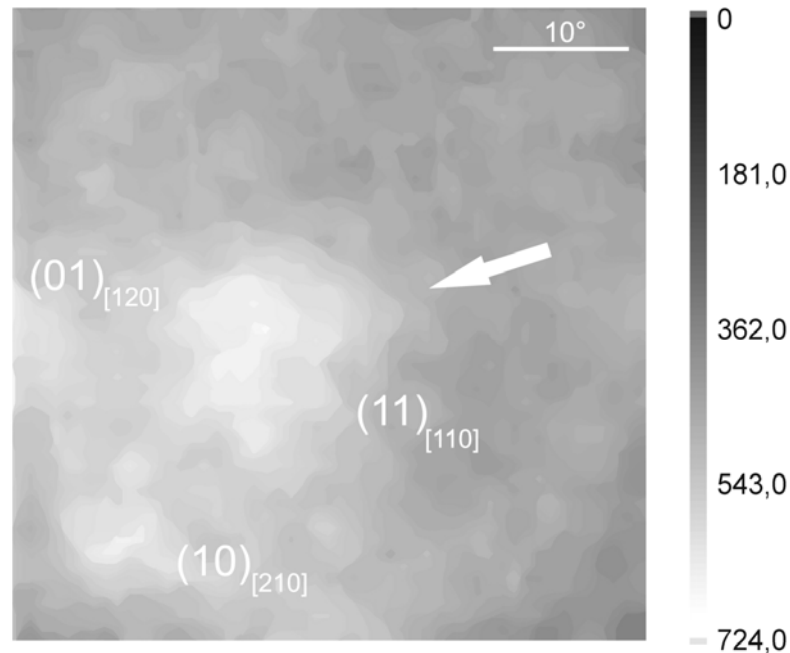


Abb. 4.25: winkelaufgelöste Elektronenintensität an einer rauen, d.h. streifend mit 25 keV Ar^+ -gesputterten und nicht ausgeheilten Oberfläche, ohne Untergrundsubtraktion für Winkelbereiche senkrecht zur Oberfläche (markiert durch die Pfeilspitze) Detektionsenergie 55 ± 6 eV, Anregung 29 keV streifend einfallende H^+ -Projektile, die Einheiten der Legende sind cts/s

deutliche Beugungsreflexe auf, was darauf schließen lässt, dass die beim streifenden Sputtern erreichbare Reduzierung der strukturellen Fernordnung nicht ausreicht, um den ioneninduzierten Beugungsprozess zu unterdrücken. (Diese Daten stehen im Widerspruch zu der in [WE01] geführten Argumentation, dass das Auftreten von Beugungseffekten auf leichte Projektile (H^+ , H_2^+) beschränkt sei, da schwerere Ionen (Ne^+) durch Sputtering die Oberfläche aufräumen.)

Aus diesem Blickwinkel sind Beugungsbeiträge auch bei der Streuung an polykristallinen Oberflächen nicht auszuschließen, da die Einzelkristallite solcher Oberflächen laterale Ausdehnungen weit über der mittleren freien Weglänge angeregter Metallelektronen aufweisen.

Zusammenfassend kann die Ursache für Strukturen und Intensitätsüberhöhungen in ioneninduzierten Elektronenspektren sowohl in grundlegenden physikalischen Prozessen wie Augerübergänge, Plasmonzerfall oder Autoionisation liegen. Sie können aber auch durch Beugungseffekte der Kristalloberfläche hervorgerufen sein.

Trotz der moderaten Energieauflösung und des eingeschränkten Akzeptanzwinkels wurde ein erster Nachweis von IILEED-Effekten durch die energiedispersive Nutzung eines konventionel-

len SPA-LEED-Systems realisiert. Für weiterführende Untersuchungen dieses elementaren Emissionsprozesses und der damit korrelierten Elektronenanregung, erscheinen orts- und impuls aufgelöste Flugzeitmessungen mittels großflächigem Channelplatedetektor viel versprechend zu sein.

5 Wachstumskontrolle mittels ioneninduzierter Sekundärelektronenemission

Nachdem im letzten Kapitel die Grundzüge der ioneninduzierten kinetischen Elektronenemission unter dem Aspekt der elastischen Elektronenbeugung behandelt wurden, soll in diesem Kapitel auf die Nutzung der Elektronenemission zur Beobachtung und Charakterisierung von Filmwachstumsprozessen eingegangen werden. Untersucht wird das mit der lagenweisen Epitaxie von metallischen Adsorbatfilmen (hier: Fe,Co,Mn) einhergehende oszillierende Verhalten der Elektronenausbeute. Diese Untersuchungen umfassen sowohl Targetstrommessungen als Maß für die winkel- und energieintegrale Gesamtelektronenausbeute als auch *in situ* gewonnene energieaufgelöste Elektronenspektren sowie Abhängigkeiten der auftretenden wachstumsbedingten Oszillationen vom Einfallswinkel der verwendeten Projektile (H^+ , He^+). Es wird gezeigt, dass in Abhängigkeit von den gewählten Streubedingungen eine direkte Korrelation der Elektronenemission mit den auf der Oberfläche ablaufenden Wachstumsprozessen besteht. Insbesondere liefern während des Filmwachstums *in situ* aufgenommene Elektronenspektren sowohl Informationen über die chemischen Zusammensetzung der obersten atomaren Lage (protoneninduzierte Augerspektroskopie) als auch direkte Informationen zum Wachstumsstadium und zur momentanen Bedeckung.

5.1 Wachstumsbedingte Oszillationen der Gesamtelektronenemission bei der streifenden Ionenstreuung

Da strukturelle, chemische und magnetische Eigenschaften ultradünner Adsorbatfilme kritisch von Bedeckung und Wachstumsmodus abhängen, kommt der Echtzeit-Überwachung des Filmwachstums eine entscheidende Bedeutung zu. Eine weithin genutzte Technik zur Überwachung und Wachstumscharakterisierung im Monolagen-Regime steht mit der Beugung hochenergetischer Elektronen (RHEED) zur Verfügung [LD88]. Die bei Lagenwachstum auftretende periodische Änderung der Oberflächenmorphologie führt bei RHEED zu beobachtbaren Intensitätsoszillationen reflektierter Elektronen. Aus der Anzahl der durchlaufenen Oszillationen kann auf die Monolagenbedeckung des Adsorbatfilms geschlossen werden, allerdings erschweren inelastische Beugungsphänomene eine quantitative Interpretation der RHEED-Oszillationen.

Eine zu RHEED alternative und in dieser Arbeit verwendete Methode zur Wachstumsüberwachung ist die Registrierung der spekulär reflektierten Intensität streifend an der Oberfläche gestreuter, schneller Atome oder Ionen. Dabei wird der zur Spiegelreflektion der Projektile führende kollektive Kleinwinkelstreuprozess (planare Oberflächengitterführung) durch die in der Nukleationsphase des Lagenwachstums erhöhte Defektdichte an der Oberfläche zunehmend

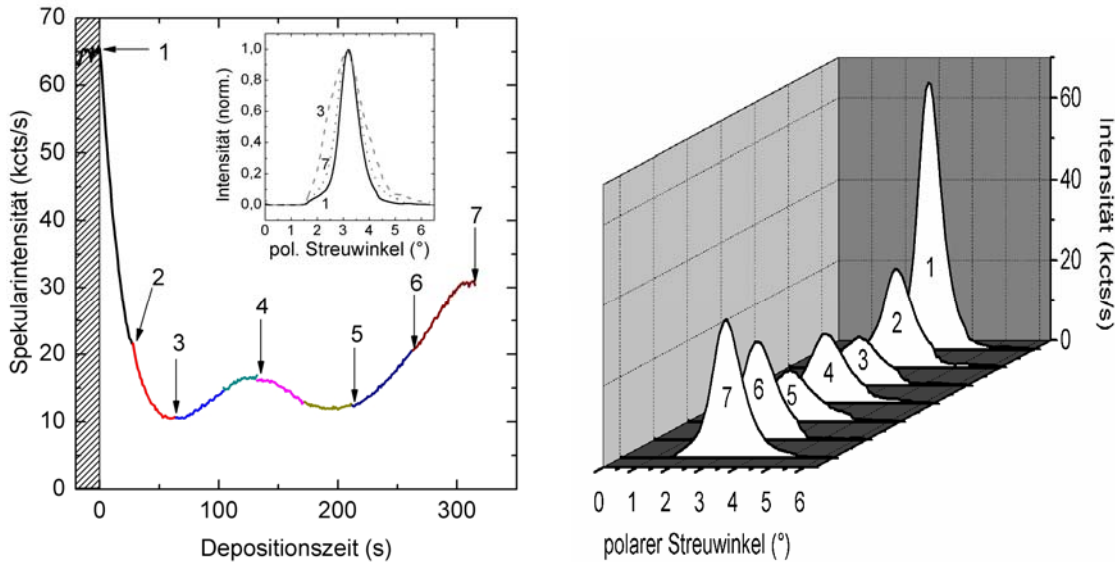


Abb. 5.1: spekulär reflektierte Ionenintensität ($\phi_{in}=1.6^\circ$, 25 keV He^0 , $\theta_{in}=15^\circ$ bzgl. [10]-Kanal) während des Wachstums von 2 ML Co auf Cu(001) ($T_{growth}=290$ K, $p=0.0065$ ML/s), an den durch Zahlen gekennzeichneten Punkten wurde der Depositionsprozess unterbrochen, um polare Streuverteilungen aufzunehmen (rechts); rechts: polare Streuverteilungen an der atomar glatten Cu(001)-Oberfläche (1) und nach der iterativen Deposition von Co (2-7), zu erkennen ist die mit der Abnahme der Spekularintensität einhergehende Reduzierung der gesamten in den Detektionsbereich fallenden Ionenintensität (Flächenintegral der Streuverteilungen)

gestört, einhergehend mit einer Reduzierung der spekulär reflektierten Streuintensität. Das anschließende laterale Wachstum der Inseln bis hin zur Koaleszenz ist wiederum mit einer Verringerung der Defektdichte und demzufolge mit einer Zunahme der reflektierten Ionenintensität verbunden. In Analogie zu RHEED kann so aus den oszillierenden Intensitäten die aktuelle Adsorbatbedeckung bestimmt werden, allerdings mit dem Vorteil, dass bei der Ionenstreuung wegen der rein kinematisch beschreibbaren Stoßprozesse eine direktere Interpretation realisierbar ist. Die Detektion der spekulär reflektierten Intensitäten erfordert für beide Methoden die Einhaltung einer definierten Streugeometrie.

Abbildung 5.1 links zeigt die Entwicklung der mit einem Channeltrondetektor registrierten maximalen Spekularintensität gestreuter 25 keV He^0 -Projektile ($\phi_{in}=1.6^\circ$) während des Wachstums von 2.0 Monolagen (ML) Co auf einem Cu(001)-Substrat. Zur Aufnahme von polaren Winkelverteilungen spekulär gestreuter Projektile wurde die Co-Deposition kurzzeitig unterbrochen. Die farbig markierten Teilstücke der Wachstumskurve in Abb. 5.1 links geben den iterativen

Depositionsprozess wieder. Die zu den entsprechenden Submonolagenbedeckungen gehörenden Streuerverteilungen sind in Abb. 5.1 rechts zusammengefasst. Anhand der Streuerverteilungen ist zu erkennen, dass die Abnahme der Maximalintensität mit der Reduzierung der in den gesamten detektierbaren Winkelbereich fallenden Ionenintensität einhergeht. Über die Streuerverteilungen bei glatter (Abb. 5.1 Streuerverteilung (1))- und wachstumsbedingt rauher Oberfläche (Abb. 5.1 Streuerverteilung (3)) kann eine Reduzierung der in den Spekularwinkelbereich gestreuten Projektile um 80 % abgeschätzt werden. Dies lässt den Schluss zu, dass im Bereich des frühen

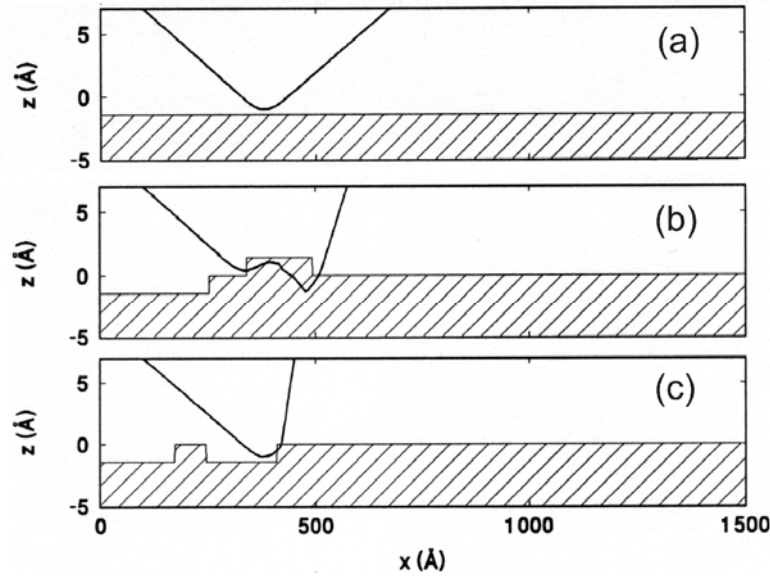


Abb. 5.2: Trajektorien-simulationen (25 keV He, $\phi_{in}=1.6^\circ$, $\theta=\text{random}$) für die ideal glatte Oberfläche (hier Fe(110)) in (a) und für die Wechselwirkung mit einlagigen- (c) bzw. doppelagigen Stufenkanten (b), zu erkennen ist die Grosswinkelaufstreuung an Stufenkanten, aus [PF98]

Lagenwachstums (Nukleations- und Aggregationsphase) das für die planare Oberflächengitterführung gültige Regime der korrelierten Kleinwinkelstöße fast vollständig zusammenbricht. Stattdessen vollzieht das statistische Mittel der gestreuten Projektile in diesen Bedeckungsstadien harte binäre Wechselwirkungen mit Adsorbatatomen an Stufenkanten von Inselrändern. Die in Abb. 5.2 gezeigten Trajektorien-simulationen für die streifende Streuung ($\phi_{in}=1.6^\circ$) von 25 keV He-Projektilen an einer perfekten (a) und gestuften (b, c) Oberfläche verdeutlicht die Auswirkungen von Stufenkanten auf den statistischen Streuprozess.

Für atomar glatte Oberflächen kann näherungsweise ein vom senkrechten Oberflächenabstand z abhängiges, planares Kontinuumspotential nach Ziegler, Littmark und Biersack (ZBL) [ZB85]:

$$U_p(z) = 2\pi \cdot n_s Z_1 Z_2 a \sum_i \frac{a_i}{b_i} \exp(-b_i z / a_{corr}) \quad (5.1)$$

mit der Flächendichte n_s , den Kernladungszahlen Z_1 und Z_2 für Projektil- bzw. Targetelement und den Parametern nach Moliere [MO47] $a_i=\{0.35, 0.55, 0.1\}$ bzw. $b_i=\{0.3, 1.2, 6\}$ angenommen werden. Dabei entspricht:

$$a_{corr} = [\alpha(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2}) + \beta]a_F \quad (5.2)$$

mit $\alpha=0.045$ und $\beta=0.54$ der von O'Connor und Biersack korrigierten Firsov'schen Abschirmlänge für Thomas-Fermi Atome ([FI58], [CB86]):

$$a_F = 0.8854(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{-2/3} \quad (5.3)$$

Über Gl. 5.1 und der im Umkehrpunkt der Trajektorie gültigen Bedingung:

$$E_{\perp} = E_0 \sin^2 \phi_{in} = U_p(z_{min}) \quad (5.4)$$

mit der Projektilenergie E_0 und dem Einfallswinkel ϕ_{in} kann der minimale Abstand z_{min} des Projektils zur Oberfläche abgeschätzt werden. So beträgt für die Streuung von 25 keV He (H)-Projektilen unter einem Einfallswinkel von $\phi_{in}=1.6^\circ$ der minimale Abstand zur Oberfläche $z_{min} \approx 0.9 \text{ \AA}$ (für H: 0.5 \AA). Im idealen Fall der ungestörten planaren Oberflächengitterführung gilt für alle beim Durchlaufen der Trajektorie auftretenden einzelatomaren Wechselwirkungsabstände p_i :

$$p_i \geq z_{min} \quad (5.5)$$

Der nukleare Energieverlust der Projektile ist in diesem Regime vernachlässigbar, vielmehr wird der Energieverlust durch die dissipative Wechselwirkung mit Elektronen des Valenzbandes bestimmt [LW05]. Primäre Ursache für die auftretende Elektronenemission ist demnach die binäre Coulombanregung quasifreier Valenzelektronen durch das einfallende Projektil (siehe Kap. 4.1).

Die beim Lagenwachstum auftretenden hohen Nukleationsdichten (z.B.: Co/Cu(001): $n_{nucl}=10^{12} \text{ cm}^{-2}$ [PF03]) lassen eine statistische Beschreibung der Trajektorien durch ein planares Oberflächenpotential entsprechend Gl. 5.1 nicht mehr zu. Die in diesem Wachstumsstadium dominierende binäre Atom-Atom-Wechselwirkung an Stufenkanten ist mit einer Verringerung der im statistischen Mittel auftretenden Wechselwirkungsabstände verbunden, d.h., in diesem Regime gilt im Unterschied zu Gl. 5.5:

$$z_{min} = r'_{min} \geq p'_i \geq r'_{min} \quad (5.6)$$

Die untere Grenze r'_{min} kann dabei über die größtmögliche Annäherung bei der zentralen binären Wechselwirkung geschirmter Coulombpotentiale (head-on-collision, $b=0$) abgeschätzt werden. Hier folgt für den binären Stoß eines 25 keV He (H)-Projektils mit einem ruhenden Co-Atom aus der Bedingung:

$$V(r'_{\min}) = \frac{M_2}{M_1 + M_2} E_0 \quad (5.7)$$

mit dem einzelatomaren Moliere-Potential:

$$V(r') = \frac{Z_1 Z_2}{r'} \sum_i a_i \exp(-b_i r' / a_f) \quad (5.8)$$

ein minimaler Wechselwirkungsabstand r'_{\min} von ca. 0.02 Å (für H: 0.005 Å). In diesem Regime ähnelt die Projektil-Oberflächenwechselwirkung eher ein- oder mehrfachen Gasphasenstößen. Der Energieverlust der Projektile wird hier durch nukleare und elektronische Anteile bestimmt. Letztere setzen sich aus Valenzelektronenanregungen, Promotionsprozessen und Innerschalenionisationen zusammen [MM93].

Dementsprechend sollte die zu den Streubedingungen an der Oberfläche korrelierte Elektronenemission ebenfalls deutliche Änderungen beim Wechsel von einem zum anderen Streuregime aufweisen, so dass eine Wachstumsüberwachung auch über die ioneninduzierte Elektronenemission möglich erscheint. Allerdings wurden die einzigen Messungen, die direkt Oszillationen der Sekundärelektronenemission nachweisen konnten, mit einem RHEED-Aufbau, d.h. mit streifend einfallenden Elektronen, durchgeführt [VN82]. Die Intensität der emittierten

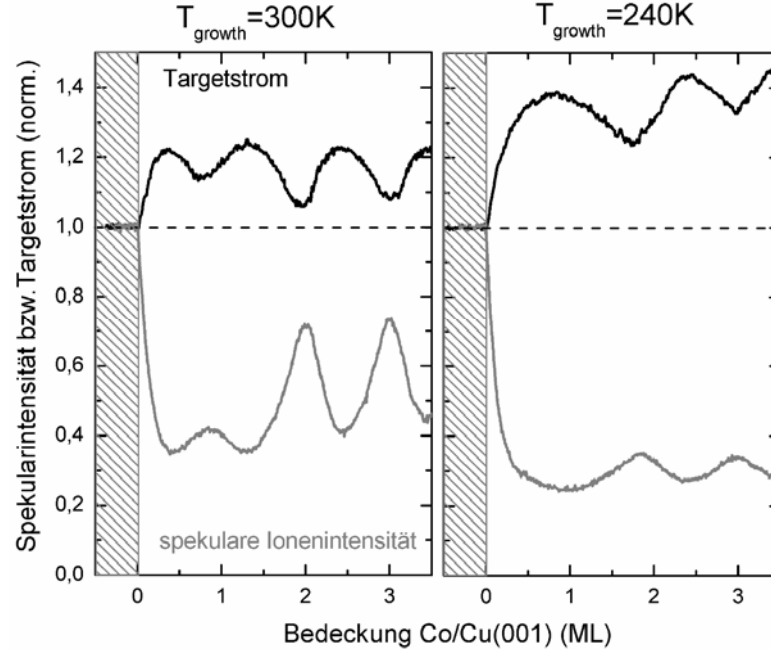


Abb. 5.3: Vergleich der periodische Änderungen des ioneninduzierten Targetstromes (—) und der Spekularintensität (—) während der Deposition von 3 ML Co/Cu(001), aufgrund des hohen Emissionskoeffizienten wird der Targetstrom durch die ioneninduzierte Elektronenemission bestimmt, aus beiden zueinander korrelierten Signalen kann der Bedeckungsgrad bestimmt und das Wachstum charakterisiert werden (Lagenwachstum bei $T_{\text{growth}}=290$ K (links) bzw. anfängliches Doppellagenwachstum bei $T_{\text{growth}}=240$ K), angeregt wurde mit 25 keV He^+ , $\phi_{\text{in}}=1,6^\circ$ $\theta=15^\circ$, typ. Targetstrom $I_{\text{tar}} \sim 10$ nA

Sekundärelektronen variiert dabei im Bereich von 0.1 % und stellt keine sinnvolle Alternative

zu den Signalen der elastisch reflektierten Primärelektronen dar. Für einen ersten Nachweis von wachstumsbedingten Oszillationen der *ioneninduzierten* Elektronenemission wurden zeitgleich die spekulär reflektierte He-Ionenintensität und der zum isoliert aufgehängten Target fließende elektrische Strom während des Wachstums von 5 ML Co/Cu(001) bei zwei verschiedenen Wachstumstemperaturen ($T_{\text{growth}}=295$ K bzw. 240 K) registriert (Abb. 5.3).

Wegen der hohen Anzahl der je Projektil emittierten Elektronen (Emissionskoeffizient $\gamma \sim 10$) können die einfallenden und reflektierten Projektilladungsbeiträge zum Targetstrom vernachlässigt werden. Letzterer stellt so ein gutes Maß für die Gesamtintensität emittierter Elektronen dar. Für die in Abb. 5.3 gezeigte Messung wurde eine Ionenstromdichte von ca. 0.1 nA/mm^2 benutzt. Das entspricht einem Ionenstrom auf der überstrichenen Targetoberfläche (7 mm^2) von ca. 0.7 nA . Der gemessene Targetstrom liegt im Bereich von ca. 10 nA und kann bei einer gut isolierten Probe (Isolationswiderstand $R \approx 15 \text{ G}\Omega$) problemlos mit Hilfe eines nA-Meters gemessen werden. Die aus der minimalen Intensität spekulär reflektierter Ionen zu schließende erhöhte Rauigkeit bei halblagiger Bedeckung ($1/2, 3/2, 5/2 \text{ ML}$) geht mit einer Erhöhung der Elektronenemission und damit des Targetstromes einher, so dass der Targetstrom einen zur Spekularintensität inversen Verlauf aufzeigt. Die beim Raumtemperaturwachstum von Co/Cu(001) (Abb. 5.3 links) auftretende durchschnittliche Signaldifferenz zwischen halben und vollen Lagen (Oszillationshub h) ist im Vergleich zur Spekularintensität ($h_{2\text{ML}}^{\text{spec}} = I_{3/2\text{ML}} - I_{2\text{ML}} \approx 40\%$) beim Targetstrom reduziert und liegt im Bereich von $h_{2\text{ML}}^{\text{emis}} \approx 20\%$ des Ausgangssignales. Trotzdem folgt aus der Depositionsmessung eine direkte Korrelation der reflektierten Ionenintensität und des induzierten Targetstromes, so dass in Echtzeit und in-situ sowohl die momentane Schichtdicke als auch eine qualitative Wachstumscharakterisierung allein über den Targetstrom möglich ist. Insbesondere die durch doppelagige Bedeckungsanteile erhöhte Stufenkantendichte der ersten Co-Lage (Abb. 5.3. links) führt analog zur Spekularintensität auch in der Elektronenemission zu einem geringeren Oszillationshub ($h_{1\text{ML}} \approx 10\%$). Bei Verringerung der Depositionstemperatur auf $T_{\text{growth}}=240 \text{ K}$ wird das Co/Cu(001)-Wachstum bis zu einer Bedeckung von zwei Monolagen durch die Nukleation und Aggregation doppelagiger Co-Inseln bestimmt, so dass erst bei einer nominellen Bedeckung von ca. zwei Monolagen die Koaleszenz dieser Inseln abgeschlossen ist [BP03]. Dieses Doppelagierenwachstum kann direkt aus dem oszillationsfreien Verlauf des Targetstromes im Bedeckungsbereich bis zwei Monolagen (Abb. 5.4. rechts) geschlossen werden. Auch in diesem Wachstumsregime zeigt sich eine direkte Korrelation zwischen Spekularintensität und Elektronenausbeute. Insbesondere das durch die verringerte Wachstumstemperatur rauere Wachstum führt im Vergleich zur Raumtemperaturmessung zur erhöhten Elektronenemission. Auffällig ist hier, dass trotz deutlich reduzierter Oszillationshübe

der Spekularintensität ($h_{2ML}^{spec} \approx 20\%$) für die tiefere Wachstumstemperatur die Oszillationen des Targetstromes, wenn auch bei insgesamt höheren Werten, weiterhin im Bereich von $h_{2ML}^{emis} \approx 20\%$ liegen.

Eine mögliche Erklärung liegt im zusätzlichen Einfluss der sich beim Wachstum ändernden Paarkorrelation auf die Intensität spekulär reflektierter Ionen (siehe dazu [PF98]), wohingegen der Grund für das oszillatorische Verhalten der Elektronenausbeute im Wesentlichen auf die sich ändernde Stufenkantendichte zurückführbar ist. Ein weiterer Grund für das quantitativ unterschiedliche Signalverhalten des Targetstromes könnte auch im Einfluss der sich chemisch und rauigkeitsbedingt ändernden Austrittsarbeit liegen. Als dominante oder alleinige Ursache für die wachstumsinduzierten Targetstromoszillationen kann die Änderung der Austrittsarbeit allerdings weitgehend ausgeschlossen werden, da im Vergleich zu den deutlichen ioneninduzierten Oszillationshüben von 20 %, bei der Anregung mittels streifender Elektronen am homoepitaktischen System Fe/Fe(001) [VN82] bei vergleichbaren Wachstumseigenschaften nur verschwindend geringe wachstumsbedingte Änderungen der Sekundärelektronenemission im Bereich von unter 0.1 % registriert wurden. Die rauigkeitsbedingte Änderung der Austrittsarbeit sollte allerdings weitgehend unabhängig von der Art der Anregung zu vergleichbaren Oszillationshüben führen.

Die beim Lagenwachstum ultradünner Filme auftretende periodische Modifikation der Oberfläche (Stufenkantendichte, Inseldichte etc.) ist bei der streifenden Ionenstreuung mit einer ebenfalls periodischen Änderung der mittleren Elektronenausbeute verbunden. Nachgewiesen wurde diese Korrelation durch Oszillationen des ioneninduzierten Targetstroms während des Wachstums mehrerer atomarer Co-Lagen auf Cu(001). Die wachstumsbedingt auftretenden Änderungen des Targetstroms liegen im Bereich von 20 % des ioneninduzierten Gesamtstromes (ca. 10 nA) und können mit Hilfe eines empfindlichen Strommessgerätes (nA-Meter) nachgewiesen werden. Anhand der auftretenden Targetstromoszillationen kann der Bedeckungsgrad bestimmt und die Art des Wachstums charakterisiert werden. Im Gegensatz zu den etablierten Verfahren zur Wachstumsüberwachung (RHEED, streifend reflektierte Ionenintensität) ist für die Aufnahme von Elektronenemissionsoszillationen die Einhaltung einer Reflektionsgeometrie nicht erforderlich. Die Methode ist dementsprechend einfach zu realisieren.

5.2 Bedeckungsabhängige Änderungen von Elektronenspektren

Ein direkter Rückschluss von der wachstumsbedingten Änderung der Elektronenemission auf die in den einzelnen Wachstumsstadien dominierenden elektronischen Anregungsprozesse wird insbesondere durch den Beitrag von *Sekundärelektronen* an der Gesamtemission erschwert.

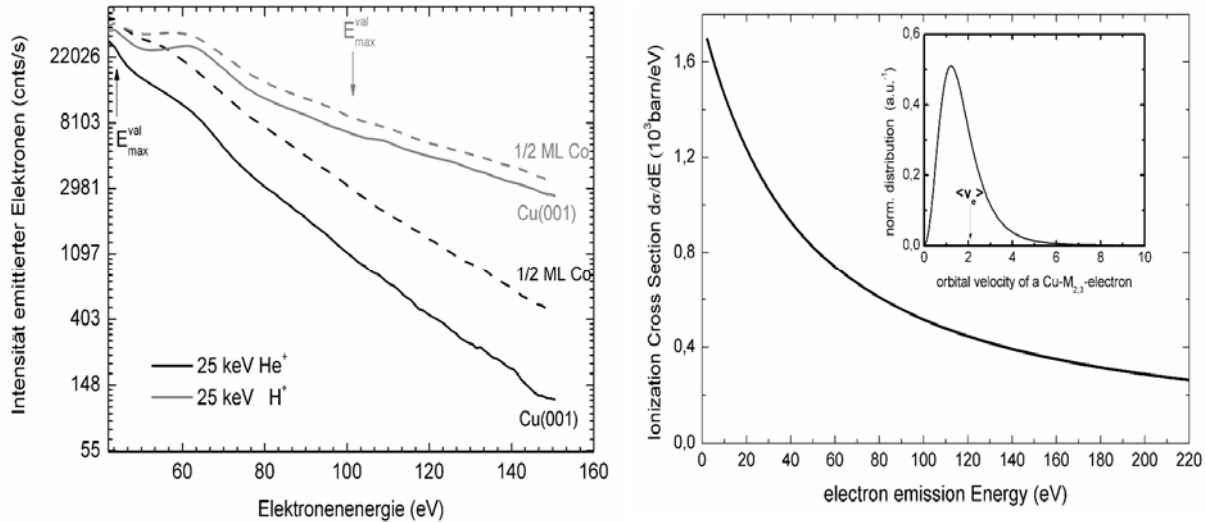


Abb. 5.4: links: Energiespektren (40 eV – 160 eV) emittierter Elektronen bei der streifenden Streuung von 25 keV He⁺ (—) bzw. H⁺-Projektilen (---) an Cu(001) ($\phi_{in}=1.6^\circ$, $\theta_{in}=-10^\circ$ von [10], $\phi_{det}=12^\circ$ zur Oberflächennormalen) vor und nach der Deposition einer halben Monolage Co ($T_{growth}=290$ K, $p=0,0065$ ML/s), eingetragen sind die maximalen Anregungsenergien für Fermielektronen bei 25 keV He bzw. H-Anregung, rechts: über die Binärstoßnäherung (BEA) berechneter einfach differentieller Eielektron-Ionisierungsquerschnitt der Cu-M-Schale in Abhängigkeit von der Emissionsenergie des Elektrons nach der Wechselwirkung, berechnet aus [MM93]

So zeigen energief aufgelöste Elektronenspektren sowohl für die atomar glatte als auch für wachstumsbedingt raue Oberfläche im niederenergetischen Bereich ein exponentiell abklingendes Verhalten. Im höherenergetischen Bereich des Emissionsspektrums sollten allerdings zunehmend primäre Anregungs- und Emissionsprozesse beobachtbar sein. Abb. 5.4 links zeigt die Energieverteilung emittierter Elektronen ($\phi_{det}=12^\circ$) im Energiebereich von 40 eV - 150 eV vor und nach der Deposition einer halben Monolage Co auf Cu(001) ($T_{growth}=300$ K). Die Elektronenemission wird dabei durch streifend einfallende ($\phi_{in}=1.6^\circ$) He⁺ bzw. H⁺-Ionen initiiert. Der um $\theta=-10^\circ$ aus der [10]-Gitterrichtung herausgedrehte azimutale Einfallswinkel (Randomstreuung) wurde so gewählt, dass eine maßgebliche Beeinflussung der Spektren durch Beugungseffekte weitgehend auszuschließen ist. Allerdings könnten für den Energiebereich oberhalb von 120 eV schwache Beugungsanteile des (20)_[100]-Reflexes auftreten. Das gilt insbesondere für die H⁺-induzierten Elektronenspektren (vgl. dazu Abb. 4.13).

Die gewählte He^+ -Ionenstromdichte liegt im Vergleich zu den protoneninduzierten Spektren ca. 10-mal so hoch. Abgesehen von den überlagerten Intensitäten in den H^+ -induzierten Spektren bei 60 eV, die Cu-MVV-Augerelektronen zuzuordnen sind, zeigen alle Spektren ein mit zunehmender Elektronenenergie exponentielles Abklingen. In dem an der glatten Substratoberfläche aufgenommenen protoneninduzierten Elektronenspektrum ist insbesondere für die Bereiche oberhalb und unterhalb der über Gleichung 4.3 berechneten maximalen Emissionsenergien für Anregung von Fermielektronen (durch Pfeile in Abb. 5.4 gekennzeichnet) keine Änderungen der Verlaufsform zu erkennen. Ein Hinweis darauf, dass auch in diesem Energiebereich hochenergetische Sekundärelektronen wesentlich zur Emission beitragen.

Im Vergleich zum protoneninduzierten Spektrum zeigt die energieaufgelöste Emissionsverteilung He^+ -angeregter Elektronen an der glatten Cu-Oberfläche einen deutlich stärkeren exponentiellen Abfall. Dies ist im Wesentlichen durch den geringeren binären Energieübertrag auf Fermielektronen und durch den größeren einzelatomaren Wechselwirkungsabstand zu erklären. Im Vergleich zu ca. 40 eV für die maximale Emissionsenergie für He^+ -angeregte Fermielektronen können, wenn auch mit sehr geringer Intensität, emittierte Elektronen mit bis zu fünfmal höheren Elektronenenergien ($E_e \sim 220$ eV) gemessen werden. Aus energetischen Betrachtungen kann der Ursprung dieser Elektronen nur durch Innerschalenionisationsprozesse unter Berücksichtigung der Compton-Impulsverteilung atomarer Elektronenzustände erklärt werden. Exemplarisch zeigt Abb. 5.4 rechts den für einen 25 keV He-Cu-Gasphasenstoß berechneten Ionisationsquerschnitt σ für ein in der Cu-M-Schale gebundenes Elektron ($E_B = 60$ eV) in Abhängigkeit von der kinetischen Energie dieses Elektrons nach der Ionisation. Berechnet wurde der energiedifferentielle Ionisationsquerschnitt mit Hilfe der klassischen Binärstoßnäherung (BEA), näheres dazu findet man in [MM93]. Da die hier verwendeten Geschwindigkeiten der Projektile (He: $v = 0.5$ a.u., H: $v = 1.0$ a.u.) unterhalb der Orbitalgeschwindigkeiten gebundener Cu-Elektronenzustände (> 2.1 a.u.) liegen, können deutliche Abweichungen der experimentellen und berechneten absoluten σ -Werte auftreten. Trotzdem verdeutlicht Abb. 5.4 rechts, dass die Ionisierung von Core-Zuständen, aufgrund der statistischen Verteilung der jeweiligen Orbitalgeschwindigkeiten, auch die Erzeugung hochenergetischer Elektronen nach sich zieht. Voraussetzung dafür sind allerdings harte binäre Wechselwirkungen der Projektile mit einzelnen Substratatomten, die im Fall der streifenden He-Streuung nur an Aufwärtsstufenkanten auftreten können. Demzufolge sind die bei präparierter Cu-Oberfläche selten stattfindenden Stufenkantenwechselwirkungen für die niedrigen Intensitäten hochenergetischer Elektronen verantwortlich.

Bestätigt wird diese Interpretation durch die deutliche Zunahme emittierter hochenergetischer Elektronen in den Spektren nach He^+ -Anregung und der Deposition einer halben Monolage Co (Abb. 5.4 links (---)). Insbesondere zeigt der Vergleich der beiden He^+ -induzierten Emissionsspektren in Abb. 5.4 links ein zu höheren Energien hin divergentes exponentielles Verhalten, wohingegen die H^+ -angeregten Spektren, abgesehen von einer leichten Zunahme der Intensitäten bei halblagiger Bedeckung, einen weitgehend identischen exponentiellen Verlauf aufweisen.

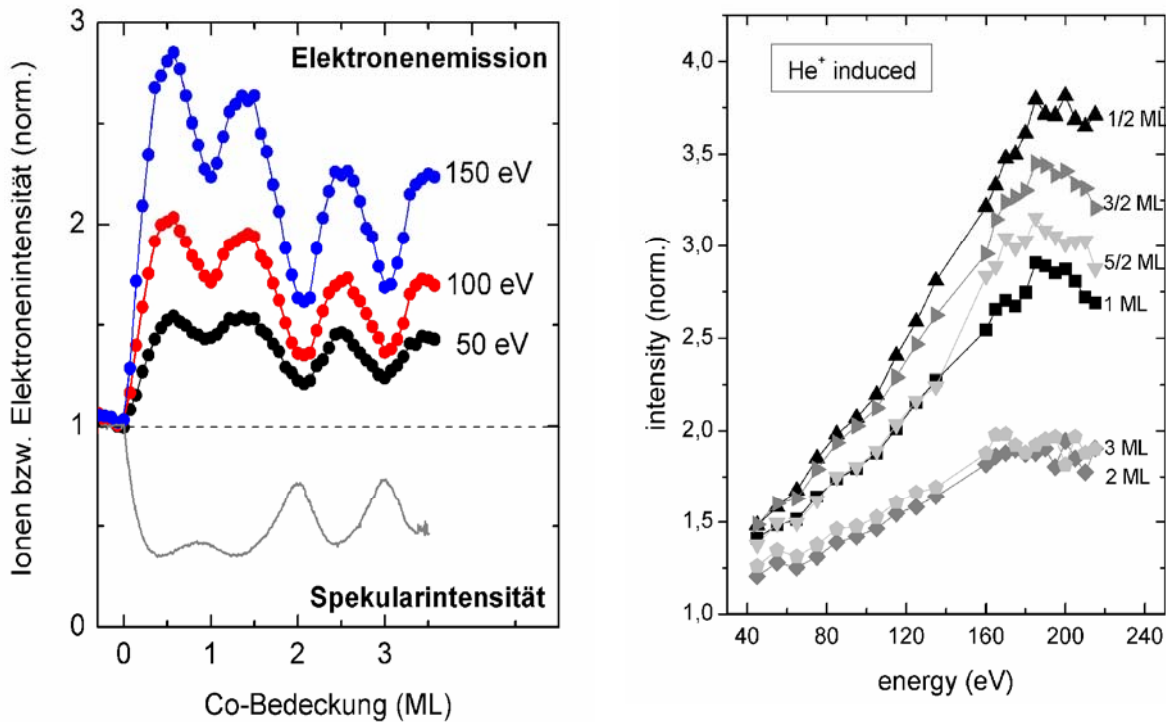


Abb. 5.5: links: normierte Intensität emittierter Elektronen (Anregung: 25 keV He^+ , $\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$) mit den Emissionsenergien: 50 eV, 100 eV und 150 eV während der Deposition von 3 ML Co auf Cu(001) ($T_{\text{growth}}=290$ K) im Vergleich zur He-Spekularintensität. Die Elektronenintensitäten sind Elektronenspektren entnommen (vgl. Abb. 5.4 links), die in-situ während der kontinuierlichen Co-Deposition aufgenommen wurden. rechts: aus den normierten Emissionssoszillationen (links) entnommene relative Elektronenintensitäten für halbe und volle Co-Lagen. Die Differenz der relativen Intensitäten für aufeinanderfolgende halbe ($n-1/2$) und volle (n) Lagen entspricht dem Oszillationshub h , es ergibt sich bei He-Anregung eine lineare Abhängigkeit des Oszillationshubes h von der Emissionsenergie

Die deutlich geringere rauigkeitsbedingte Beeinflussung der absoluten Intensitäten und das identische exponentielle Verhalten der H^+ -induzierten Spektren deutet daraufhin, dass die für die Intensitäten im untersuchten Energiebereich ursächlichen Emissionsprozesse in annähernd gleichem Maße an der atomar glatten und wachstumsbedingt rauen Oberfläche auftreten. So zeigt das ausgeprägte Cu-MVV-Augersignal des H^+ -induzierten Spektrums, dass schon im Regime der planaren Oberflächengitterführung an der glatten Substratoberfläche Innerschalenionisationsprozesse (hier Ionisation der M-Schale) stattfinden (siehe auch [PL93]) und so die relative wachstumsinduzierte Änderung in diesem Energiebereich im Vergleich zur He^+ -Anregung geringer ausfällt.

Im Unterschied dazu kann aus der unterdrückten Cu-MVV-Augerintensität des He-Spektrums auf eine vernachlässigbare Ionisationswahrscheinlichkeit im Regime der planaren Oberflächen-gitterführung geschlossen werden, so dass nach der Deposition einer halben Monolage die rauhigkeitsbedingten Emissionsprozesse die He-Spektren dominieren. Ein weiterführender Vergleich von Auger- und hochenergetischen Elektronenintensitäten ist, sowohl wegen des hier verwendeten heteroepitaktischen Schichtsystems, als auch wegen der insgesamt geringen He-induzierten MVV-Augerintensitäten nicht sinnvoll.

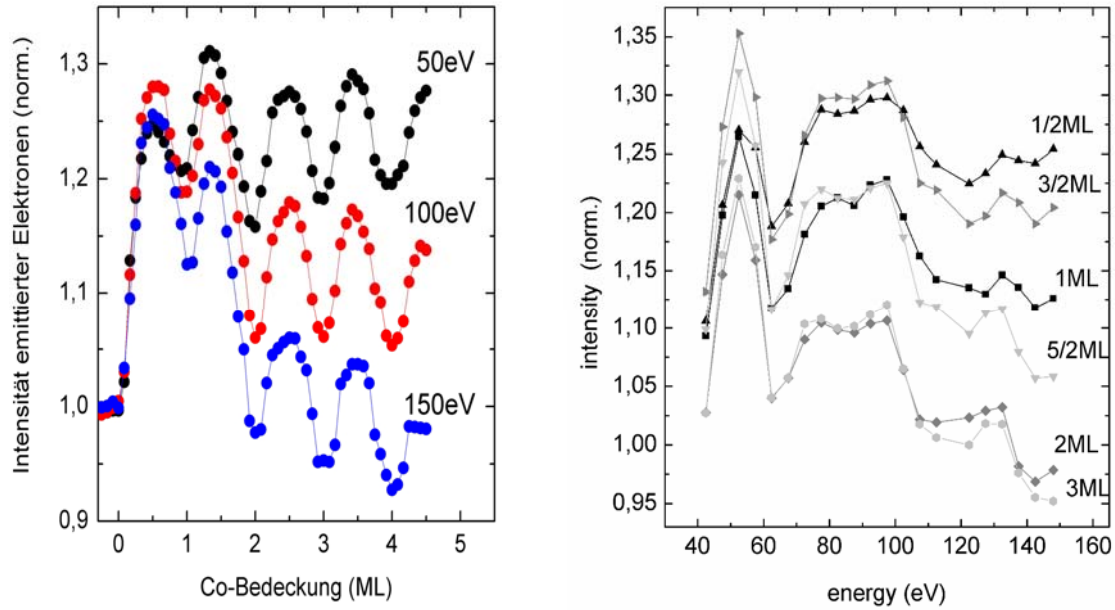


Abb. 5.6: wie Abb. 5.5 für 25 keV H^+ -Anregung, $\phi_{in}=1.6^\circ$, durch den im Vgl. zur He^+ -Anregung um ca. eine Größenordnung verringerten Oszillationshub h (beachte die geänderte Skalierung der Ordinate) wird der Verlauf der wachstumsbedingten Emissionsoszillationen (links) im Energiebereich von 50 eV-70 eV durch die Cu bzw. Co-MVV-Augerintensitäten und im Bereich oberhalb von 120 eV durch Beugungseffekte (Reflexintensitäten des $(20)_{[100]}$ -Spots) beeinflusst.

Zusammenfassend bietet sich für eine oberflächensensitive in-situ Wachstumskontrolle eine kontinuierliche Registrierung der hochenergetischen 25 keV-He-induzierten Emissionsanteile während der Adsorbatdeposition an. Allerdings wurden die in Abb. 5.5 gezeigten Emissionsoszillationen einzelnen Energiespektren (40 eV – 150 eV) entnommen, die während des kontinuierlich laufenden Depositionsprozesses aufgenommen wurden. Bei einer Aufdampftrate von 220 s/ML wurde eine Integrationszeit der einzelnen Spektren von 17 s/Spektrum gewählt, so dass die wachstumsbedingten Änderungen der Elektronenemission anhand von ca. 13 Spektren je Monolage nachvollzogen werden können. Die Änderungen der Elektronenspektren vollzieht sich je nach erreichtem Co/Cu(001)-Wachstumsstadium gemäß dem in Abb. 5.4 exemplarisch für die glatte bzw. raue Oberfläche dargestellten Verlauf. Der divergente Spektrenverlauf für halbe bzw. geschlossene atomare Lagen hat im Energiebereich von 40 eV bis 170 eV eine lineare Zunahme des beobachtbaren Oszillationshubes von $h_{2ML}^{40eV} \approx 20\%$ auf bis zu $h_{2ML}^{170eV} \approx 200\%$

zur Folge. Oberhalb von ca. 170 eV sättigen die Intensitätsdifferenzen zwischen halben und abgeschlossenen atomaren Lagen weitgehend. Ob der Absättigungsbereich auf eine stagnierende, bzw. oberhalb von $E_{\text{det}} = 200$ eV auf eine scheinbar leicht reduzierte Ionisationswahrscheinlichkeit oder auf ein konstantes durch Targetkantenstreuung oder andere aufbaubedingte Artefakte hervorgerufenes Untergrundrauschen zurückzuführen ist, kann hier nicht geklärt werden. In jedem Fall liegen die beobachtbaren wachstumsinduzierten Änderungen emittierter hoch-energetischer Elektronen über den unter gleichen Streubedingungen registrierbaren Oszillationen der spekulär reflektierten Ionenintensität.

Im Gegensatz zu den im relativen Verhalten wie auch in der absoluten Elektronenintensität deutlich unterschiedlichen He-Spektren für die glatte bzw. wachstumsbedingt raue Probenoberfläche, weisen die H^+ -induzierten Elektronenspektren einen identischen Spektrenverlauf bei vergleichsweise geringem Anstieg der absoluten Elektronenintensitäten auf. Dementsprechend fallen die in-situ gewonnenen wachstumsbedingten Oszillationen der H^+ -induzierten Elektronenspektren weit geringer aus ($h_{2ML}^{100eV} \approx 20\%$), als die unter gleichen Streubedingungen durchgeführten He-Messungen. Trotzdem können Wachstumsmodus und momentane Bedeckung direkt aus den beobachtbaren Emissionsoszillationen entnommen werden (Abb. 5.6 links). Allerdings werden diese rauigkeitsinduzierten Effekte im Fall der H^+ -Anregung von der Änderung der stöchiometrischen Oberflächenzusammensetzung während des Co-Depositionsprozesses überlagert. So resultieren die in Bezug zum reinen Cu-Spektrum erhöhten Intensitäten im Energiebereich um 55 eV (Abb. 5.6 rechts) aus dem Anstieg der Co-MVV-Augerlinie bei zunehmender Co-Bedeckung. Aufgrund des annähernd identischen exponentiellen Spektrenverlaufes für die raue bzw. atomar glatte Oberfläche, kann durch Normierung der Spektren auf die chemisch unbeeinflussten Signale zwischen 75 eV und 90 eV eine quantitative Analyse des Cu-MVV-Augersignals bei 60 eV erfolgen, so dass aus den protoneninduzierten Elektronenspektren sowohl die nominelle Co-Bedeckung als auch die stöchiometrische Zusammensetzung der Oberfläche entnommen werden kann. Einflussfaktoren für die sich bei zunehmender Co-Bedeckung oberhalb von $E_{\text{det}} = 100$ eV relativ zum Cu-Spektrum stetig verringernden Elektronenintensitäten sind das Auftreten von schwachen Cu-Augerintensitäten bei 101 eV und mögliche Elektronenbeugungsanteile des oberhalb von 120 eV in den Detektionsbereich wandernden $(20)_{[100]}$ -Reflexes.

Ein Beispiel für den Informationsgehalt ioneninduzierter Elektronenspektren, sowohl zur Bestimmung der momentanen Adsorbatbedeckung als auch zur Analyse der stöchiometrischen Zusammensetzung der Oberfläche mittels Auger-Signalauswertung, zeigt Abb. 5.7. Auch hier wurden während des Tieftemperatur-Co-Wachstums ($T_{\text{growth}} = 120$ K) in-situ H^+ -induzierte Elektronenspektren im Energiebereich $E_{\text{det}} = 40$ eV-85 eV aufgenommen (ca. 7 Spektren/ML). Die im

Vergleich zum Raumtemperaturwachstum erhöhte Nukleationsdichte von ca. $n=10^{13} \text{ cm}^{-2}$ führt zu einer exponentiellen Abnahme der spekular reflektierten Ionenintensität auf unter 10 %.

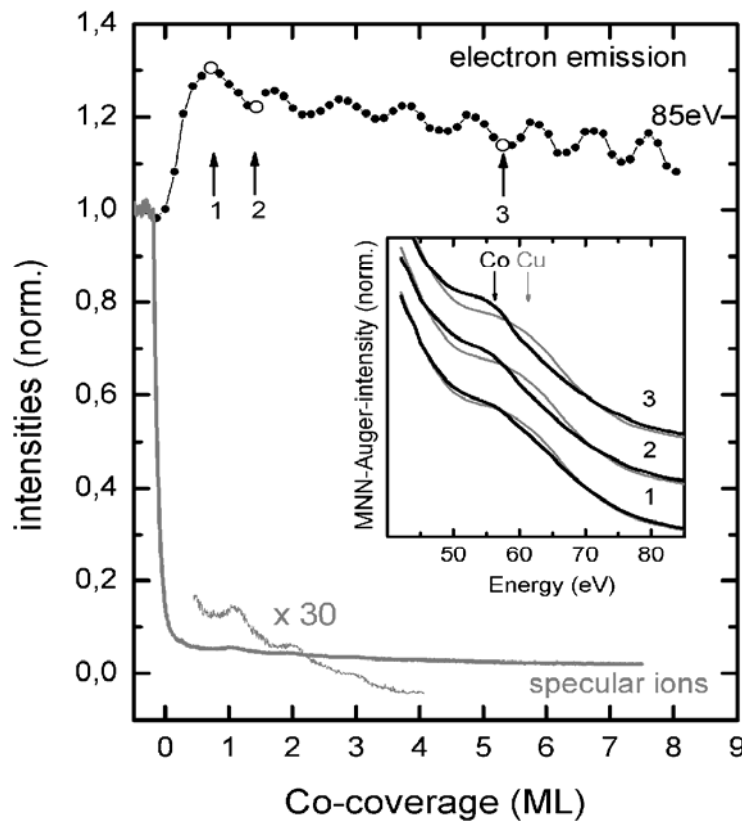


Abb. 5.7: Intensitätsverlauf emittierter Elektronen mit einer Emissionsenergie von 85 eV bei der streifenden Streuung von 25 keV H^+ -Projektilen ($\phi_{\text{in}}=1,6^\circ$) während des Tieftemperaturwachstums von Co/Cu(001) ($T_{\text{growth}}=130 \text{ K}$), die Intensitäten wurden Elektronenspektren entnommen die während der kontinuierlichen Co-Deposition aufgenommen wurden, im Gegensatz zur Spekularintensität kann über die Elektronenemissionsoszillationen der Bedeckungsgrad auch bei höherer Co-Bedeckung bestimmt werden, Inset: die zu den markierten Intensitätswerten bei 0.5 ML (1), 1.0 ML (2) bzw. 5 ML (3) gehörenden normierten Elektronenspektren (—), zu erkennen ist im Vgl. zum Elektronenspektrum der reinen Cu-Oberfläche (—) die Verringerung der Cu- und der Anstieg der Co-MVV-Augerlinie bei zunehmender Co-Bedeckung.

Trotz fehlender thermischer Aktivierung können durch die zur Verfügung stehende Kondensationsenergie adsorbierter Co-Atome in geringem Maße Oberflächendifusionsprozesse aufrechterhalten werden [BP03]. Das sich so entwickelnde raue transiente Lagenwachstum führt allerdings zu stark gedämpften Intensitätsoszillationen spekular reflektierter Ionen, so dass bei Bedeckungen oberhalb von 3 ML die Bestimmung der nominellen Bedeckung mittels spekular reflektierter Ionen nicht möglich ist.

Die vollständige Auslöschung der Cu-MVV-Augerlinie im Bedeckungsbereich oberhalb von 1.0 ML weist auf durchmischungsfreies Lagenwachstum hin:

Die in der Nukleationsphase, d.h. im Bedeckungsbereich unterhalb einer halben Monolage, noch deutlich vorhandenen Cu-MVV-Augerintensitäten (vgl. Spektrum (1) im Inset von Abb. 5.7) werden erst nach der Aggregations- und Koaleszenzphase des Wachstums vollständig ausgelöscht (Spektrum (2) Abb. 5.7). Dementsprechend können Strahlabschattungseffekte durch

vorhandene Co-Inseln (siehe Kapitel 5.3), als alleiniger Grund für den Rückgang des Cu-Signals weitgehend ausgeschlossen werden. Vielmehr führt das laterale Wachstum der Co-Inseln zur beobachtbaren Auslöschung des Cu-MVV-Augersignals.

Bestätigt wird diese Interpretation durch die wachstumsbedingten Emissionsoszillationen. Abb. 5.7 zeigt den bedeckungsabhängigen Verlauf der aus den protoneninduzierten Auger-Spektren entnommenen 85 eV Elektronenintensitäten. Obwohl auch hier im Vergleich zum Raumtemperaturwachstum (Abb. 5.6) eine deutliche Verringerung des Oszillationshubes auftritt ($h_{2ML}^{85eV} \approx 5\%$), was insgesamt auf ein raueres Wachstum schließen lässt, zeigen die Emissionsoszillationen im Gegensatz zur Spekularintensität bei fortschreitender Bedeckung ein ungeämpftes oszillatorisches Verhalten. Die sich kaum ändernde Periodizitätslänge der Emissionsoszillationen bis zu einer Co-Bedeckung von 9 ML entspricht sowohl der aus der Verdampfungsrate als auch der aus den gedämpften Oszillationen der Spekularintensität zu schließenden nominellen Bedeckung. Abgesehen von der so realisierbaren Bedeckungsbestimmung auch für dickere Co-Filme eröffnet die Messung der wachstumsbedingten Emissionsoszillationen Einblick in fortlaufende Wachstumsprozesse, die mittels spekulär reflektierter Ionen nicht zugänglich sind.

In-situ aufgenommene Elektronenspektren lassen den Schluss zu, dass die primäre Ursache für die bei der He^+ -Streuung auftretenden wachstumsbedingten Emissionsoszillationen auf die sich periodisch ändernde Stufenkantendichte zurückzuführen ist. Die in der Nukleationsphase erhöhte Anzahl an harten binären Wechselwirkungen mit Adsorbatatomen an Inselrändern führt zu einer deutlichen Zunahme angeregter hochenergetischer Elektronen. Die von diesen Elektronen erzeugten Elektronenkaskaden beeinflussen alle Energiebereiche der Emissionsspektren und tragen so zur Erhöhung der Gesamtemission bei.

Die mit 25 keV H^+ -Ionen induzierten Elektronenspektren zeigen im Gegensatz zu den He-Spektren kaum wachstumsbedingte Änderungen des *relativen* Spektrenverlaufes, was die Separierung und die quantitative Auswertung der Cu-MVV-Augerintensitäten während des Co-Wachstums ermöglicht. Zusätzlich kann aus den wachstumsinduzierten Oszillationen der *absoluten* Intensitäten der Spektren auf die momentane Bedeckung geschlossen werden.

5.3 Wachstumsbedingte Oszillationen der Elektronenemission in Abhängigkeit vom polaren Einfallswinkel

Die Verringerung des polaren Einfallswinkels führt im allgemeinen zu einer Erhöhung der mittleren Wechselwirkungslänge der He-Projektile an der Oberfläche einhergehend mit einer Zunahme der Wechselwirkungswahrscheinlichkeit mit wachstumsinduzierten Stufenkanten. Da bei planarer Oberflächengitterführung durch die Wahl eines kleineren Einfallswinkels der mini-

male Projektil-Oberflächenabstand zunimmt und so Innerschalenionisationen für die glatte Oberfläche herabgesetzt werden, sollte die Verringerung des Einfallswinkels insgesamt zu einer

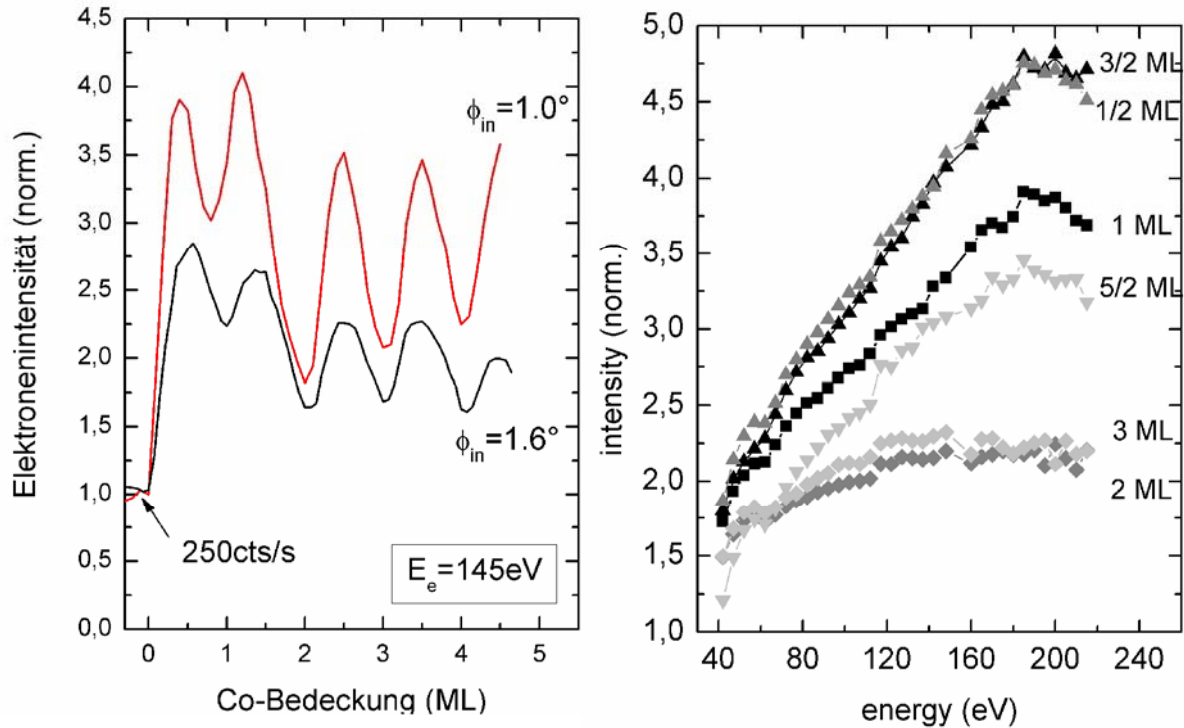


Abb. 5.8 links: Vergleich der ioneninduzierten (25 keV-He⁺) Emissionsoszillationen hochenergetischer Elektronen ($E_e=145\text{ eV}$) während des Wachstums von Co/Cu(001) ($T_{\text{growth}}=290\text{ K}$) für verschiedene Ioneneinfallswinkel ($\phi_{in}=1.0^\circ$ und 1.6°); rechts: emittierte Elektronenintensitäten für halbe und volle Co-Lagen in Abhängigkeit von der Elektronenenergie, normiert wurde auf das Elektronenspektrum am sauberen, atomar glatten Cu(001)-Kristall, im Vergleich zu Abb. 5.5 rechts wurde hier der He⁺-Einfallswinkel auf $\phi_{in}=1.0^\circ$ reduziert

Erhöhung der beobachtbaren Oszillationshübe führen. In Abb. 5.8 werden die während der Deposition von 4.5 ML Co/Cu(001) ($T_{\text{growth}}=295\text{ K}$) auftretenden Wachstumsoszillationen emittierter 145 eV-Elektronen bei zwei verschiedenen Einfallswinkeln verglichen. Die Reduzierung des Einfallswinkels von $\phi_{in}=1.6^\circ$ auf $\phi_{in}=1.0^\circ$ führt gemäß den vorhergehenden Überlegungen zu einer deutlichen Erhöhung des beobachtbaren Oszillationshubes. Auch bei $\phi_{in}=1.0^\circ$ zeigt sich eine lineare Abhängigkeit des Oszillationshubes von der Elektronenenergie (Abb. 5.8 rechts). Allerdings führt eine weitere Verringerung des polaren Einfallswinkels auf Werte $\phi_{in}<1.0^\circ$ zu einer erneuten Reduktion der Oszillationen. Abb. 5.9 fasst die Abhängigkeit des Oszillationshubes $h_{2ML}^{190\text{eV}} = (I_{3/2ML}^{190\text{eV}} - I_{2ML}^{190\text{eV}}) / I_{Cu}^{190\text{eV}}$ vom polaren Einfallswinkel ϕ_{in} für 190 eV-Elektronen zusammen. Eine plausible Interpretation des resonanzartigen Verhaltens des Oszillationshubes als Maß für die relative Wechselwirkungswahrscheinlichkeit mit wachstumsinduzierten Stufenkanten liefert das in Abb. 5.10 dargestellte eindimensionale Projektionsmodell. Ausgehend von dem mittleren Inselabstand x , der mittleren Inselgröße d und der Stufenhöhe h

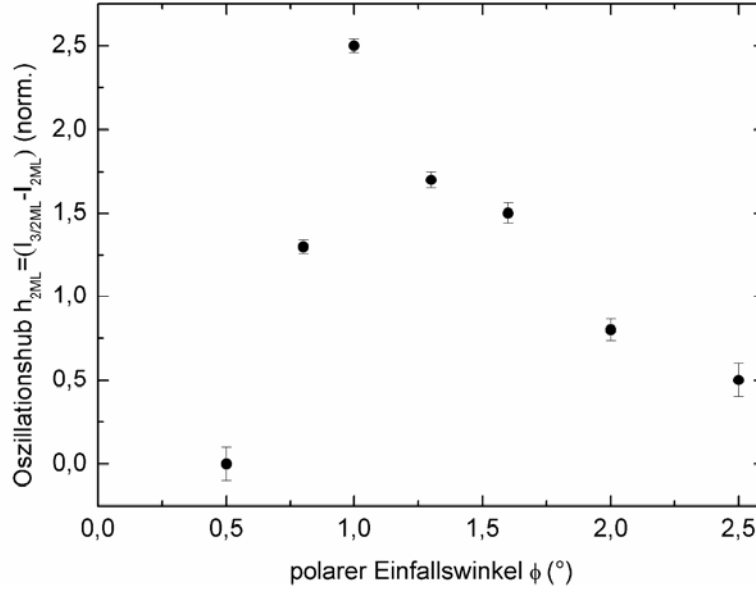


Abb. 5.9: Oszillationshub h_{2ML} für emittierte 190 eV Elektronen in Abhängigkeit vom polaren Ioneneinfallswinkel (Anregung: 25 keV He^+)

ergibt sich ein kritischer polarer Einfallswinkel $\tan(\phi_{sh}) = (x - d)/h$. Eine Erhöhung des Einfallswinkels im Bereich $0 < \phi < \phi_{sh}$ führt wegen verringerter Abschattung benachbarter Inselränder zu einer linearen Erhöhung der Wechselwirkungsbereiche mit Stufenkanten (rote Abschnitte in Abb. 5.10 a), so dass mit Erreichen des kritischen Winkels $\phi = \phi_{sh}$ relativ zur gesamten projizierte Wechselwirkungsfläche (rote und blaue Abschnitte in Abb. 5.10 b) der Stufenkantenanteil ein Maximum erreicht. Die Vergrößerung des Einfallswinkels im Bereich $\phi > \phi_{sh}$ reduziert den Stufenkantenanteil wieder, da zunehmend Wechselwirkungen in der unteren atomaren Lage stattfinden (Abb. 5.10 c). Für den aus Abb. 5.9 zu entnehmenden kritischen Winkel $\phi_{sh} \approx 1.0^\circ$ folgt für das Projektionsmodell unter der Annahme einlagiger Inseln ($h = 1.8 \text{ \AA}$) bei einer nominellen Bedeckung von 0.4 ML ein Inselabstand von $x \approx 280 \text{ \AA}$ und eine Inselgröße von $d \approx 180 \text{ \AA}$. Aus dem Inselabstand kann unter der Voraussetzung quadratischer Co-Inseln auf eine Sättigungsinselfichte von $n = 1.3 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ geschlossen werden. Dieser Wert ist um etwa eine Größenordnung kleiner als die unter gleichen Wachstumsbedingungen über STM-Analyse bestimmte Nukleationsdichte von $n_{\text{Co/Cu}} = 2.2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ [NM99]. Allerdings findet das Einfallswinkelverhalten der Emissionsoszillationen nicht zuletzt wegen der Vernachlässigung der Projektiltrajektorien im Projektionsmodell keine realistische, d.h. quantitativ aussagekräftige, Entsprechung. Da die Erzeugung hochenergetischer Elektronen zwingend an die Wechselwirkung mit

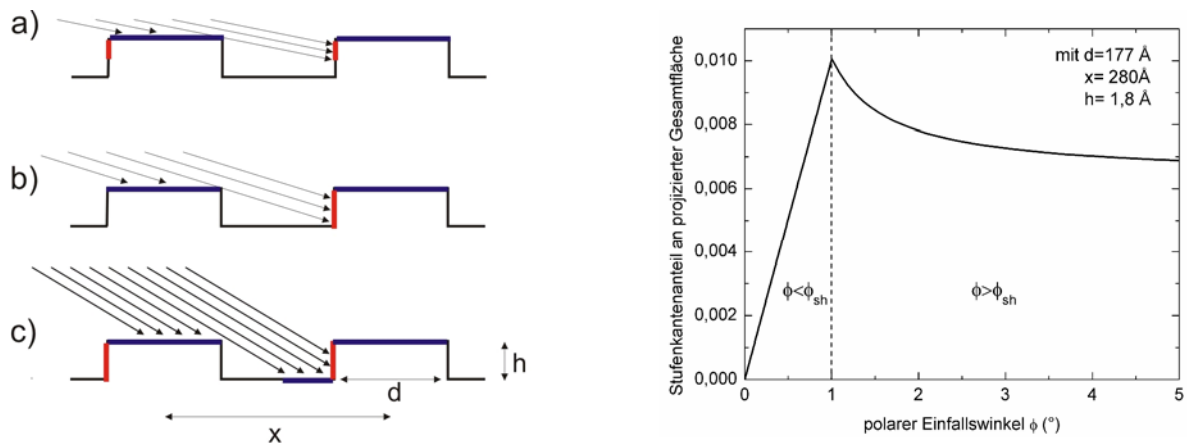


Abb. 5.10: links: schematische Darstellung des geometrischen Projektionsmodells: bei sehr flachen Einfallswinkeln mit $\phi < \phi_{sh} = \arctan((x-d)/h)$ werden die Stufenkanten benachbarter Inseln abgeschattet (a), für den Einfallswinkel $\phi = \phi_{sh}$ erreicht der Stufenkantenanteil an der bestrahlten Gesamtfläche ein Maximum (b), bei weiterer Erhöhung des Einfallswinkels auf $\phi > \phi_{sh}$ nehmen die bestrahlten Flächenanteile der tiefer liegenden atomaren Lage zu, was eine Reduzierung des Stufenkantenanteils nach sich zieht (c); rechts: der aus dem Projektionsmodell berechnete Stufenkantenanteil an der projizierten Gesamtfläche, dabei wurde die mittlere Inselgröße d und der mittlere Inselabstand x unter der Annahme einatomar hoher Inseln ($h=1,8 \text{ \AA}$) an die experimentelle Einfallswinkelabhängigkeit des Oszillationshubs (Abb. 5.9) angepasst

Stufenkanten geknüpft ist, sollten allerdings aus Oszillationen der ioneninduzierten Elektronenemission über Trajektorienimulationen quantitative Aussagen insbesondere zur Stufenkanten- und Nukleationsdichte möglich sein.

5.4 Änderungen der Anzahlstatistik emittierter Elektronen während des Filmwachstums

Zur Bestimmung der Anzahlverteilung emittierter Elektronen wurde der in Kap. 3.2 beschriebene Sperrschicht-Elektronendetektor verwendet. Aus den wachstumsbedingten Oszillationen

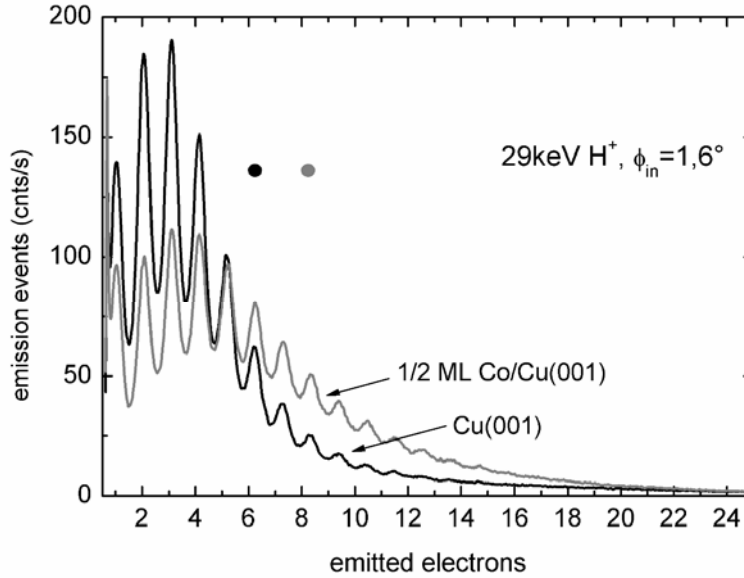


Abb. 5.11: Änderung der Anzahlstatistik emittierter Elektronen (Anregung: 29 keV H^+ , $\phi_{in}=1,6^\circ$) vor (—) und nach (---) der Deposition einer halben Monolage Co auf Cu(001) ($T_{growth}=290$ K), die bei halblager Bedeckung erhöhte Stufenkantenwechselwirkung führt zu einer Steigerung des mittleren Emissionskoeffizienten (markiert durch Punkte) von $\gamma=6e/Ion$ auf $\gamma=8e/Ion$, dabei wird die gesamte Verteilung in Richtung höherer Emissionsanteile verschoben.

des Targetstromes (siehe Kap. 5.1) ist zu schließen, dass die Emissionsstatistik, die die Zählung der pro Streuereignis emittierten Elektronen k umfasst, ebenfalls periodische bedeckungsabhängige Änderungen aufweisen sollte. Die bei der streifenden Randomstreuung ($\phi_{in}=1,6^\circ$, $\theta=15^\circ$ bzgl. des [10]-Kanals) von 29 keV H^0 -Projektilen an Cu(001) auftretende Anzahlverteilung emittierter Elektronen $f(k)$ kann weitgehend mit einer Poissonverteilung beschrieben werden (Abb. 5.11 (—)). Da der Detektor im Idealfall alle während der Streuung emittierten Elektronen nachweist, kann sowohl die Gesamtanzahl der pro Zeiteinheit stattfindenden Emissionsereignisse:

$$N = \sum_{k=0}^{\infty} f(k) \quad (5.9)$$

als auch der Gesamtstrom emittierter Elektronen:

$$(5.10)$$

$$I = \frac{e}{\tau} \sum_{k=1}^{\infty} k \cdot f(k)$$

mit der Elementarladung e und der für die Verteilung notwendigen Integrationszeit τ sowie der mittlere Emissionskoeffizient:

$$\gamma_e = \frac{\sum_{k=0}^{\infty} k \cdot f(k)}{\sum_{k=0}^{\infty} f(k)} \quad (5.11)$$

aus der Elektronenanzahlverteilung entnommen werden. Voraussetzung für die experimentelle Bestimmung des Emissionskoeffizienten γ_e sind vernachlässigbare Anteile der messtechnisch unzugänglichen Null-, bzw. Einelektronemissionsereignisse. Hinreichend erfüllt ist diese Bedingung wenn für die Emissionsverteilung gilt $\gamma_e \gg 1$. Da in diesem Fall fast alle Projektile mehr

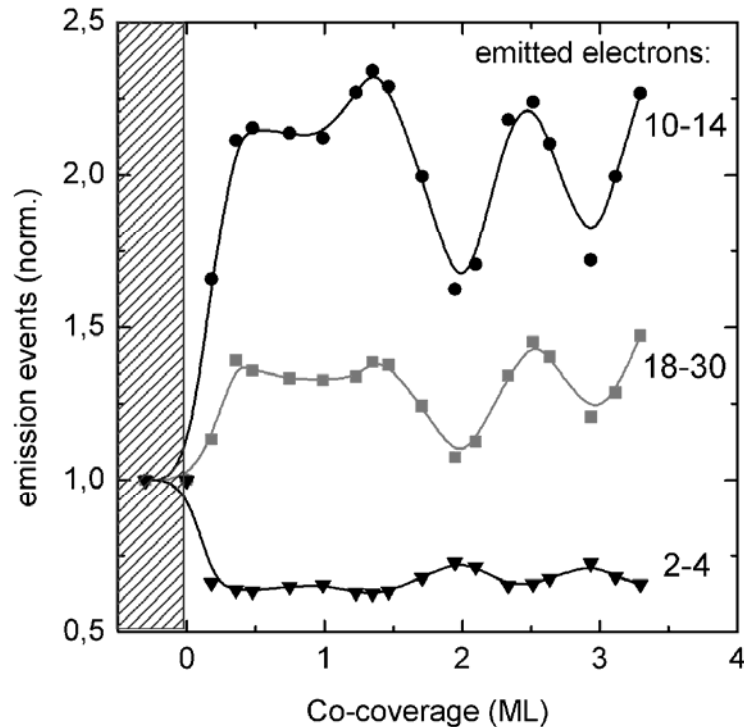


Abb. 5.12: Anzahl der Emissionsereignisse die zur Emission von 2 bis 4 Elektronen (und 10e-14e bzw. 18e-30e) führen, während des Wachstums von Co/Cu(001) ($T_{\text{growth}}=290$ K), zu erkennen ist eine rauigkeitsbedingte Reduzierung von Emissionsereignissen mit niedrigen Elektronenanzahlen (2e-4e) bei entsprechender Zunahme höherer Anzahlen (10e-14e), die zur Aufnahme der Wachstumsoszillationen notwendigen Ionenströme liegen im sub fA-Bereich. Die Registrierung der Gesamtzahl aller Emissionsereignisse macht die Aufnahme dieser Wachstumsoszillationen unabhängig von Strahlinstabilitäten (selbstnormierende Methode zur Wachstumsüberwachung)

als ein Elektron auslösen, entspricht die Summe aller registrierten Emissionsprozesse N der Anzahl an der Oberfläche gestreuter Projektile.

Die hier realisierte Detektionsgeometrie gestattet allerdings nur den Nachweis von ca. 60% aller emittierten Elektronen. Die aufbaubedingt reduzierte Überführung der Elektronen in den Detektor ergibt eine entsprechende Verschiebung der Verteilung zu kleineren Elektronenanzahlen, so dass der aus der Anzahlverteilung zu entnehmende Emissionskoeffizient für die glatte Cu-

Oberfläche von $\gamma_e=6$ bei idealer Detektion (Detektor direkt über der Targetoberfläche, etc.) um ca. einen Faktor 1.7 höher liegt. Der aus dem Verlauf der Poissonverteilung abzuschätzende Anteil nicht registrierter Emissionsereignisse $\sum f(k)$ für $k \leq 1$ liegt bei ca. 10 %. Demzufolge werden zwar nicht alle Elektronen aber fast alle Emissionsereignisse vom Elektronendetektor erfasst.

Die Deposition einer halben Monolage Co auf dem Cu(001)-Substrat ($T_{\text{growth}}=290\text{K}$) führt zu einer Verschiebung der Anzahlverteilung in Richtung höherer Emissionsereignisse (Abb. 5.11 (—)) und zu einer Erhöhung des Emissionskoeffizienten auf $\gamma_e=8$. Trotz der veränderten Elektronenanzahlverteilung bleibt die Gesamtanzahl der Emissionsereignisse N im Vergleich zur glatten Substratoberfläche annähernd konstant. Der Elektronendetektor registriert wie oben erwähnt fast alle Emissionsereignisse, deren Zahl ausschließlich vom Atomstrahl also der Anzahl der auftreffenden Projektile abhängt. Somit kann N , d.h. das Integral über das gesamte

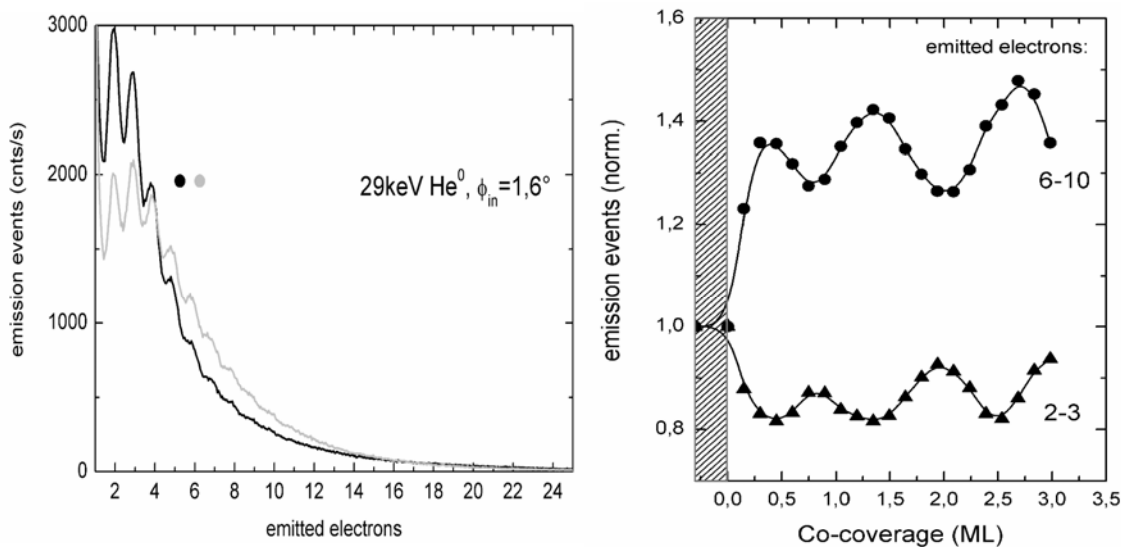


Abb. 5.13: rechts: Anzahlstatistik emittierter Elektronen vor (—) und nach (---) der Deposition einer halben Monolage Co auf Cu(001) ($T_{\text{growth}}=290\text{ K}$), im Vergleich zu Abb. 5.11) wurde hier mit 29 keV He^0 -Projektile unter einem Einfallswinkel von $\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$ gestreut, auch hier zeigt sich analog zur Protonenanregung eine Verschiebung der Verteilung zu höheren Elektronenanzahlen bei wachstumsbedingt rauerer Oberflächen; links: analog zu Abb. 5.12) hier bei der Streuung von 29 keV He^0

Elektronenspektrum, als Normierung genutzt werden, um Strahlschwankungen auszugleichen.

Für den Nachweis periodischer mit dem jeweiligen Co/Cu(001)-Wachstumsstadium korrelierter Änderungen der Anzahlstatistik wurde zur Aufnahme der Spektren der Depositionsprozess kurzzeitig (ca. 30 s) unterbrochen. Abb. 5.13 rechts zeigt relativ zum Cu-Ausgangsspektrum die bedeckungsabhängige Entwicklung einzelner Bereiche der Verteilung. Die in den frühen Wachstumsstadien erhöhte Defektdichte an der Oberfläche führt zu einer kontinuierlichen Verschiebung der Elektronenanzahlverteilung gemäß Abb. 5.13 links, einhergehend mit einer Re-

duktion von 2-4e- und einer Zunahme von höheren Emissionsereignissen. Analog durchgeführte Messungen der Anzahlstatistik mit 25 keV He⁰-Projektilen ($\phi_{in}=1,6^\circ$, $\theta=15^\circ$) zeigen ebenfalls periodische Änderungen des Emissionskoeffizienten. Auch hier wird die Poissonverteilung der glatten Cu-Oberfläche rauigkeitsbedingt leicht zu höheren Emissionszahlen verschoben. Eine bei hohen Emissionszahlen auftretende durch das Eindringen der Projektilen unter die oberste atomare Lage verursachte zusätzliche Emissionsverteilung, wie sie z.B. bei axialer Gitterführung zu beobachten ist (siehe Abb. 6.4 rechts) tritt nicht auf. Diese an den wachstumsbedingt rauhen Oberflächen nicht zu beobachtende Emissionscharakteristik für Subsurface-Ionengitterführung zeigt, dass die Projektil-Aufwärtsstufenkanten-Wechselwirkung nicht zum „Einfang“ (Abb. 5.2b), sondern vielmehr zur Großwinkelaufstreuung der Ionen führt (Abb. 5.2c), d.h. für den Fall der planaren Oberflächengitterführung wirken Stufenkanten wie klassische Potentialstufen. Diese harte repulsive Stufenkantenstreuung ist mit der Anregung hochenergetischer Elektronen verbunden, die als Primärelektronen direkt emittiert oder durch Kaskadenprozesse zu einer Erhöhung des Emissionskoeffizienten beitragen. Allerdings reduziert die Stufenkanten-Aufstreuung die Trajektorienlänge der Projektilen in Oberflächennähe, was zu einer Verringerung des Emissionskoeffizienten führen würde. Diese sich teilweise kompensierenden Effekte erklären sowohl den wachstumsinduzierten exponentiellen Emissionsbeitrag in den Energiespektren (Kaskadenelektronen) als auch die leichte Verschiebung der Emissionsverteilung zu höheren Elektronenanzahlen. Der aus den Anzahlverteilungen folgende Gesamtstrom emittierter Elektronen I (Gl. 5.10) zeigt im Vergleich zu dem unter gleichen Streu- und Wachstumsbedingungen aufgenommenen Targetstrom (vgl. Abb. 5.3) identische wachstumsbedingte Oszillationen.

5.5 Zusammenfassung

Das Lagenwachstum ultradünner metallischer Filme führt zu einer direkt mit dem jeweiligen Wachstumsstadium (Nukleation, Aggregation, Koaleszenz) korrelierten Änderung der ioneninduzierten Elektronenemission. Die wachstumsbedingte Zunahme von Stufenkanten und Defektstrukturen (Inselränder, Nukleationskeime etc.) erhöht die Wahrscheinlichkeit für binäre Projektil-Oberflächenatom-Wechselwirkungen, einhergehend mit Promotionseffekten und Binärstoßanregungen hochenergetischer Elektronen. Diese Elektronen werden zum Teil direkt emittiert oder verbleiben an der Oberfläche als Auslöser für Elektronenkaskaden. Insgesamt führen diese wachstumsinduzierten Elektronenanregungsprozesse zu einem additiven exponentiell abklingenden Intensitätsanteil in den Energiespektren, und eröffnen insbesondere für die protoneninduzierte Augerspektroskopie die Möglichkeit, durch die in-situ Aufnahme von Energiespektren, sowohl den Grad der Bedeckung, als auch die stöchiometrische Zusammensetzung der Oberflä-

che zu bestimmen. Analoge Emissionsoszillationen wurden auch für die epitaktischen Systeme Fe/Cu(001) und Mn/Cu(001) festgestellt (Abb.5.14). Auch hier kann aus den protoneninduzierten Augerspektren der Wachstumsmodus, der Bedeckungsgrad und die chemische Zusammensetzung der Oberfläche entnommen werden. Subsurface-Channeling nach erfolgtem Stufenkanneinfang von Projektilen kann als Ursache für die wachstumsinduzierten Emissionsoszillationen weitgehend ausgeschlossen werden. Insgesamt steht mit der ioneninduzierten Elektronenemission eine zu RHEED oder zur streifend reflektierten Ionenintensität alternative Methode zur Wachstumskontrolle und Charakterisierung zur Verfügung. Eine messtechnisch einfache

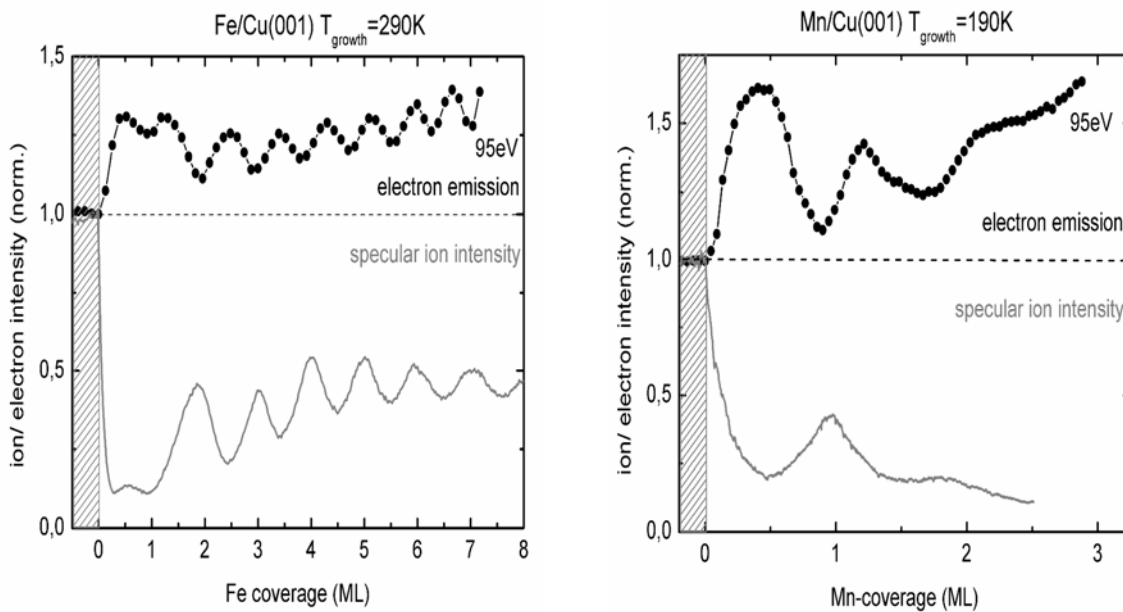


Abb. 5.14: Intensitätsverlauf emittierter Elektronen mit einer Emissionsenergie von 95eV bei der streifenden Streuung von 25 keV H^+ -Projektilen ($\phi_{\text{in}}=1,6^\circ$) während des Wachstums von Fe/Cu(001) ($T_{\text{growth}}=290\text{ K}$) (linke Abbildung) bzw. während des Wachstums von Mn/Cu(001) ($T_{\text{growth}}=190\text{ K}$) (rechte Abbildung), die Intensitäten wurden Elektronenspektren entnommen, die während der kontinuierlichen Adsorbat-Deposition aufgenommen wurden, zum Vergleich ist der Verlauf der specular reflektierten He^0 -Intensität bei vergleichbaren Wachstumsbedingungen dargestellt

Variante ist (isolierte Probe, nA-Meter) in diesem Zusammenhang die während des Filmwachstums kontinuierliche Messung des ioneninduzierten Targetstromes (Maß für die Änderung des Emissionskoeffizienten). Die Realisierung einer Reflektionsgeometrie ist im Gegensatz zu den etablierten Verfahren, wegen der annähernd isotropen ioneninduzierten Elektronenemission nicht erforderlich. Eine weitere attraktive Variante der Wachstumsüberwachung ist die Registrierung der Anzahlverteilung emittierter Elektronen mittels Sperrschichtdetektor. Zum einen eröffnet die Detektion aller auf der Oberfläche stattfindenden Emissionsereignisse die Möglichkeit einer weitgehend von Strahlinstabilitäten unabhängigen Wachstumsüberwachung (selbstnormierendes Verfahren), zum anderen werden verschwindend geringe Ionenströme von unter einem fA zur Aufnahme von Wachstumsoszillationen benötigt. Eine viel versprechende Voraussetzung für Wachstumsuntersuchungen an sensiblen, metastabilen Systemen.

6 Oberflächenstrukturanalyse mittels Ionenstrahltriangulation

Fundamental für das Verständnis chemischer, elektronischer und magnetischer Eigenschaften von Oberflächen und ultradünnen Adsorbatfilmen ist eine möglichst genaue Kenntnis über deren atomare Struktur. Für die Strukturanalyse von Oberflächen steht eine Vielzahl direkter und indirekter Messmethoden zur Verfügung, z.B. STM, SXRD, PhD, SEXAFS etc. Die überwiegende Anzahl an Strukturmodellen wurde auf der Basis quantitativer LEED-Analysen (I/V-LEED) erstellt [NI06]. Die Nutzung konventioneller LEED-Systeme, die Sensitivität der Methode auf die obersten atomaren Lagen und das weit vorangeschrittene theoretische Grundlagenverständnis machen diese Beugungsmethode zu einem attraktiven strukturanalytischen Verfahren. Trotzdem kann aus LEED-Analysen wegen der fehlenden Phaseninformation der gebeugten Elektronenwellen nicht direkt auf die vorliegende Oberflächenstruktur geschlossen werden, vielmehr wird über die iterative Anpassung von Strukturmodellen weitgehende Übereinstimmung mit den experimentellen Beugungsuntersuchungen angestrebt. Ausgehend von drei Translationsfreiheitsgraden je Atom ergeben sich für die Anordnung der Atome in einer N-atomigen Einheitszelle 3^N -Freiheitsgrade. Insbesondere für größere Einheitszellen findet nur ein Bruchteil der Gesamtheit aller möglichen Strukturen bei einer solchen iterativen I/V-LEED-Anpassung Berücksichtigung. Weiterhin ist LEED wegen der senkrecht zur Oberfläche stehenden Beugungsanordnung weitaus sensitiver auf die Atompositionen vertikal zur Oberfläche als parallel dazu [WO02]. Die Vorauswahl in Betracht kommender Strukturen setzt in den meisten Fällen zusätzliche Realrauminformationen anderer Messmethoden voraus.

Die streifende Streuung leichter Projektile an Oberflächen eröffnet in diesem Zusammenhang eine interessante Möglichkeit zur Bestimmung der langreichweitigen lateralen Atomanordnung von Oberflächen und Adsorbatfilmen. Dabei wird die bei azimuthaler Drehung der Oberfläche auftretende Änderung von planarer zu axialer Oberflächengitterführung ausgenutzt, um Richtung und Kanalbreite dicht gepackter Atomreihen der Oberfläche zu bestimmen. Die in diesem Kapitel vorgestellte Variante der Ionenstrahltriangulation (im Folgenden: IST) umfasst experimentelle Untersuchungen zur Oberflächensensitivität und Selbstnormierung der Methode, sowie ein theoretisches Konzept zur Simulation von IST-Azimutalscans. Die experimentellen Untersuchungen wurden sowohl an der unrekonstruierten Cu(001)-Oberfläche als auch an der Cu(001)c(8x2)Mn Tieftemperaturphase durchgeführt.

6.1 Methodische Grundlagen

Die Wechselwirkung streifend gestreuter Projektile mit einer ideal glatten Oberfläche entspricht einer Abfolge korrelierter Kleinwinkelstöße mit einzelnen Oberflächenatomen. Bei zufälligem azimuthalen Einfallswinkel (Randomstreuung) und einem polaren Einfallswinkel $\phi_{in} < \phi_{crit}$ kann in guter Näherung die Streuung des Projektils durch ein planares Kontinuumpotential nach Glg. 5.1 beschrieben werden. Der kritische Winkel für planare Oberflächengitterführung ϕ_{crit} berechnet sich dabei aus [WI86]:

$$\phi_{crit} = \left(\frac{2\pi \cdot Z_1 Z_2 a_{corr} A(uvw)}{E_p} \right)^{1/2} \quad (6.1)$$

mit a_{corr} aus Glg. 5.2, der mittleren Atomdichte der Oberfläche $A(uvw)$ und der Projektilenergie E_p . Nähert sich für $\phi_{in} < \phi_{crit}$ der azimuthale Einfallswinkel θ_{in} einer niederindizierten Richtung

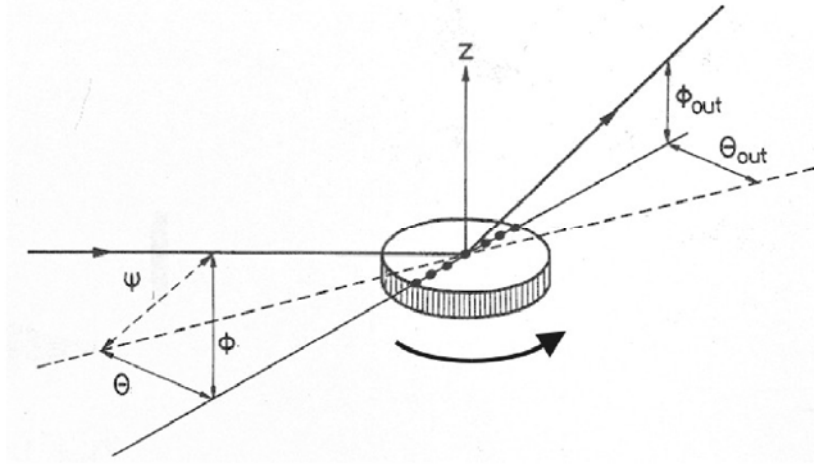


Abb. 6.1: Prinzip der Ionenstrahltriangulation (IST): fällt bei azimuthaler Drehung (θ) der Targetoberfläche der Projektilstrahl parallel zu einer niederindizierten Kanalrichtung $[hkl]$ ein, werden die Projektile nicht mehr an einem planaren sondern an $[hkl]$ -Zylinderpotentialen gestreut. Diese Änderung der Streugeometrie kann direkt über die Streuverteilung oder indirekt über die ioneninduzierte Elektronenemission nachgewiesen werden. Durch IST können so die Richtungen und relativen Kanalbreiten niederindizierter Oberflächenkanäle bestimmt werden.

$[hkl]$ in der Oberfläche ($\theta=0^\circ$), spürt das Projektil axiale $[hkl]$ -Potentiale. Gilt für den azimuthalen Einfallswinkel $\theta_{in} < \theta_{crit}$, kann das axiale Potential durch ein Zylinderpotential beschrieben werden [LI65]:

$$U_a(z) = \frac{2Z_1 Z_2}{d_{hkl}} \sum_i a_i K_0 \left(b_i \frac{z}{a_{corr}} \right) \quad (6.2)$$

wobei d_{hkl} dem interatomaren Abstand der Kettenatome, a_i und b_i den Molire-Parametern, K_0 der modifizierten Besselfunktion und z dem Abstand zur Zylinderachse entsprechen.

Der kritische Winkel θ_{crit} kann über [LI65]:

$$\theta_{crit} = \left(\frac{2Z_1 Z_2}{E_p d_{[hkl]}} - \phi_{in}^2 \right)^{1/2} \quad (6.3)$$

berechnet werden. Im Unterschied zur spiegelnden Streuung im Regime der planaren Oberflächengitterführung führt das axiale Oberflächenchanneling zu einer halbkreisförmigen

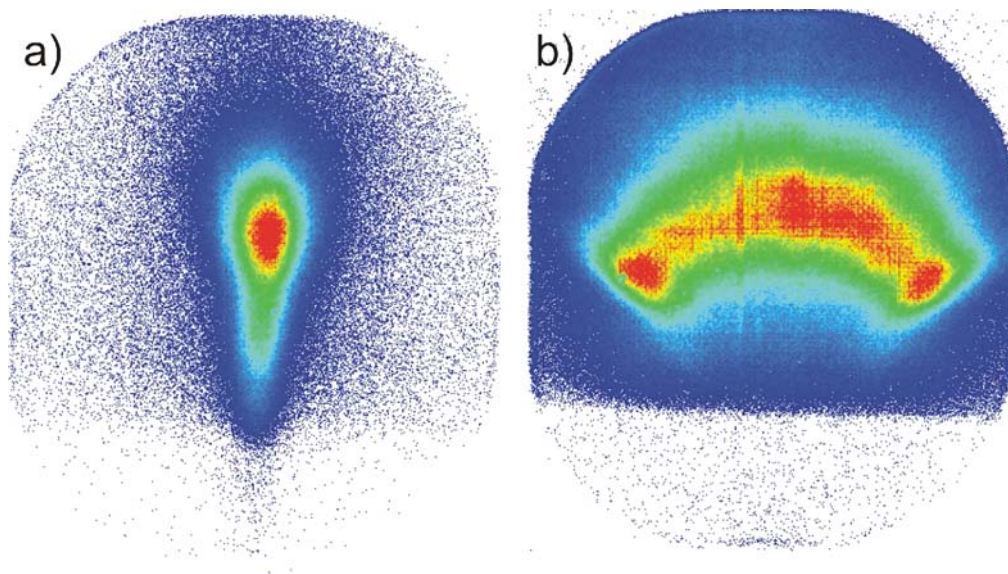


Abb. 6.2: Über einen Channelplatedetektor aufgenommene zweidimensionale Streuverteilung (25 keV He⁰ auf Cu(111), $\phi_{in}=1.5^\circ$) bei zufälliger azimuthaler Einfallsrichtung (a) und bei der Streuung parallel zum [1-1]-Kanal (b); zu erkennen ist die halbkreisförmige Aufstreuung reflektierter Projektile in (b), aus [SC05]

Aufstreuung der reflektierten Ionen (Abb. 6.2 rechts). Dementsprechend können prinzipiell über die Aufnahme der Intensitätsverteilung reflektierter Ionen während der azimuthalen Rotation der Targetoberfläche die Richtung und die Kanalbreite dicht gepackter Atomreihen der Oberfläche bestimmt werden. Nachteile dieser direkten Variante der Ionenstrahltriangulation sind:

- (1) Die reflektierte Intensitätsverteilung hängt kritisch von der gewählten Reflektionsgeometrie ab. Der sich bei der Drehung des Targets apparaturbedingt ändernde Einfallswinkel wirkt sich direkt auf die Form und Position der auftretenden Intensitätsverteilungen aus.
- (2) Filmoberflächen mit erhöhter Defektdichte haben eine deutliche Reduzierung der insgesamt in den Spekularbereich gestreuten Intensität zur Folge, was erhöhte Primärstrahlintensitäten erforderlich macht. Zum anderen führt die rauigkeitsbedingte Verbreiterung der gaußförmigen Intensitätsverteilung reflektierter Projektile (vgl. Abb.5.1 rechts) zu einer Überlagerung mit den bei axialem Channeling auftretenden Effekten, was insbesondere die Identifizierung höherindizierter Kanäle erschwert.

Aus diesen Gründen wurden strukturanalytische Untersuchungen an ultradünnen Adsorbatfilmen nicht über die Intensität spiegelreflektierter Ionen, sondern über die mit der Streuung einhergehende Elektronenemission durchgeführt. Die einfachste Variante des

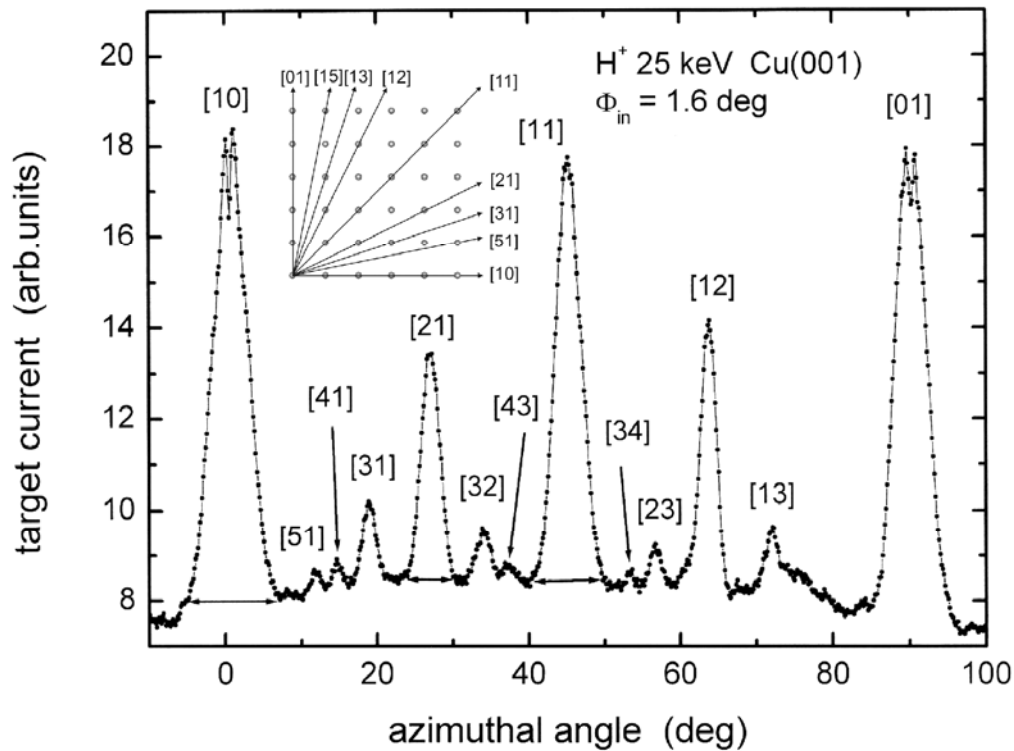


Abb. 6.3: Ioneninduzierter Targetstrom bei azimuthaler Drehung des Cu(001)-Targets während der Streuung von 25 keV H^+ Projektilen (Stromdichte: 0.3 nA/mm^2) bei einem polaren Einfallswinkel von $\phi_m = 1.6^\circ$. Liegt die azimuthale Ioneneinfallsrichtung parallel zu niederindizierten Kanalrichtungen der Oberfläche (siehe Inset) führt die axiale Streuung zu erhöhter Elektronenemission. Die relativen Höhen der Targetstrompeaks zeigen eine direkte Proportionalität zur effektiven Breite der Kanäle

Emissionsnachweises ist die Aufnahme des ioneninduzierten Targetstroms während der azimuthalen Drehung der Targetoberfläche. Einen Targetstromscan für die Cu(001)-Oberfläche zeigt Abb. 6.3. Im Vergleich zur Elektronenemission bei zufälligem azimuthalem Einfallswinkel erhöht sich der Emissionskoeffizient im Regime der axialen Gitterführung. Zu erkennen sind die niederindizierten Oberflächenkanäle der primitiven quadratischen Cu(001)-Oberfläche (Inset in Abb. 6.3). Abgesehen von der Identifizierung der einzelnen Kanalrichtungen konnte in diesen Messungen eine direkte Proportionalität zwischen der relativen Peakhöhe und der effektiven Channelingkanalbreite $d_{ap} - 2r_{crit}$ nachgewiesen werden [BP04], wobei d_{ap} der geometrischen Kanalbreite entspricht.

Unterschreitet das einfallende Projektil den kritischen Abstand r_{crit} zur Zylinderachse einer Atomkette, kann es nicht mehr axial geführt werden. r_{crit} folgt demnach aus dem kritischen Win-

kel für axiales Channeling (Glg. 6.3) und berechnet sich aus [WI86]:

$$r_{crit} = \left(\frac{Z_1 Z_2 d_{[hkl]}}{E} \right)^{1/2} \cdot \left(1 + 0.2 \ln \left(\frac{0.2 \cdot E_P a_{corr}^2}{Z_1 Z_2 d_{[hkl]}} \right) \right) \quad (6.4)$$

Die erhöhte Elektronenemission bei der Streuung entlang niederindizierter Richtungen wurde im Rahmen dieser Untersuchungen auf die bei axialer Oberflächengitterführung (Hyperchanneling) erhöhte Ionendichte zwischen den Atomketten der obersten atomaren Lage zurückgeführt. Sowohl der im Vergleich zur planaren Oberflächengitterführung längere Wechselwirkungs-

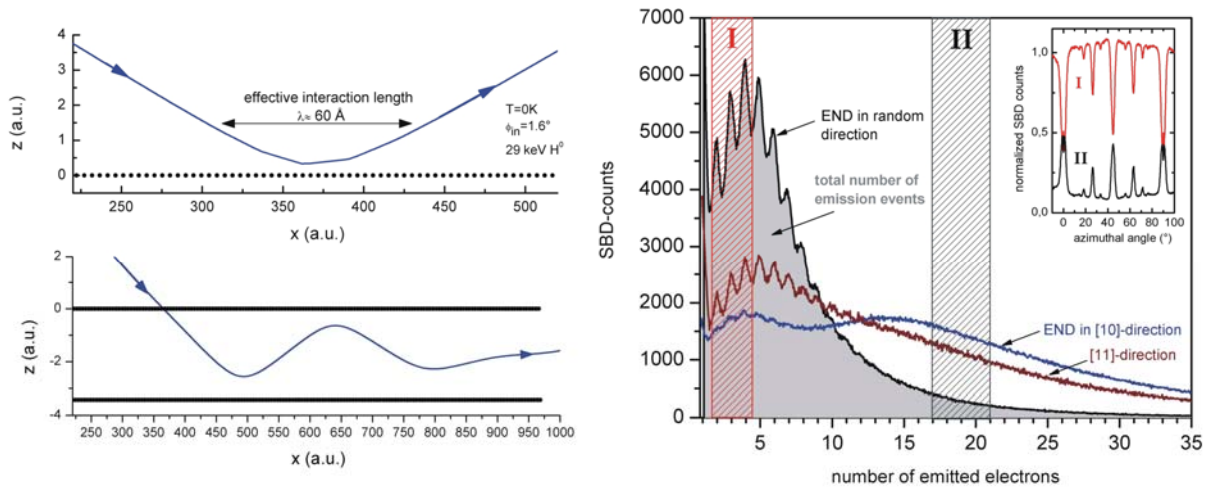


Abb. 6.4: links: Trajektoriensimulation bei zufälliger Ioneneinfallsrichtung (oben) und für die Streuung parallel zur [10]-Oberflächengitterrichtung (unten); rechts: Anzahlverteilung emittierter Elektronen (Electron Number Distribution) für die Streuung von 29 keV H^0 -Projektilen ($\phi_{in}=1.6^\circ$) in zufälliger azimuthaler Richtung (random), für die Streuung parallel zur [10]-Oberflächengitterrichtung (—) sowie parallel zur [11]-Richtung (—), zu erkennen ist die bei axialer Gitterführung auftretende zusätzliche Verteilung im Bereich hoher Emissionsanzahlen, die durch eindringende Projektilen (links unten) erzeugt wird, die Gesamtzahl an Emissionsereignissen (Flächenintegral) bleibt für alle Verteilungen nahezu konstant; Inset: bei kontinuierlicher Drehung des Targets um insgesamt $\theta=110^\circ$ (Winkelschrittweite: $\Delta\theta=0.15^\circ$, Integrationszeit: $\tau=0.5$ s, Aufnahmezeit: ca. 6 min) aufgenommene IST-Kurven für die schraffiert eingezeichneten Integrationsbereiche der Anzahlverteilungen (I bzw. II)

bereich der Projektilen in den Kanälen als auch das Vordringen der Projektilen in Oberflächenregionen mit erhöhter Elektronendichte führen im Rahmen dieses Modells zu einer Steigerung der Elektronenemission [WI86]. Die aus dieser Annahme folgende Vielzahl an Parametern (Wechselwirkungslänge der Ionen, abstandsabhängige Elektronendichte, Anregungs- und Emissionswahrscheinlichkeit etc.) erschweren eine sinnvolle Simulation der Targetstromscans.

Allerdings zeigen aktuellere Untersuchungen von Lederer *et al.* [WM04], dass die Ursache für die Erhöhung des Emissionskoeffizienten beim Übergang vom planaren zum axialen Streuregime nicht auf Hyperchannelingeffekte, d.h. auf zick-zack Bewegungen innerhalb der Kanäle, sondern vielmehr auf Projektilanteile zurückzuführen sind, die bei axialer Streugeometrie in die Oberfläche eindringen und dabei zwischen oberflächennahen atomaren Lagen axial geführt

werden (Subsurface-Channeling). Durch die axiale Gitterführung zwischen zwei atomaren Ebenen weisen diese Projektilanteile im Vergleich zum planaren Streuregime viel längere Wechselwirkungslängen in Regionen mit hoher Elektronendichte auf (Abb. 6.4 links). Gestützt werden diese Schlussfolgerungen durch den Vergleich der Anzahlverteilung emittierter Elektronen im Regime planarer und axialer Streuung bei koinzident gemessenem Energieverlust der gestreuten Projektile [WM04].

Ferner werden diese Schlussfolgerungen durch eigene Messungen der Elektronenanzahlverteilung bei der streifenden Streuung von 29 keV H^0 -Projektilen mittels Sperrschichtdetektor

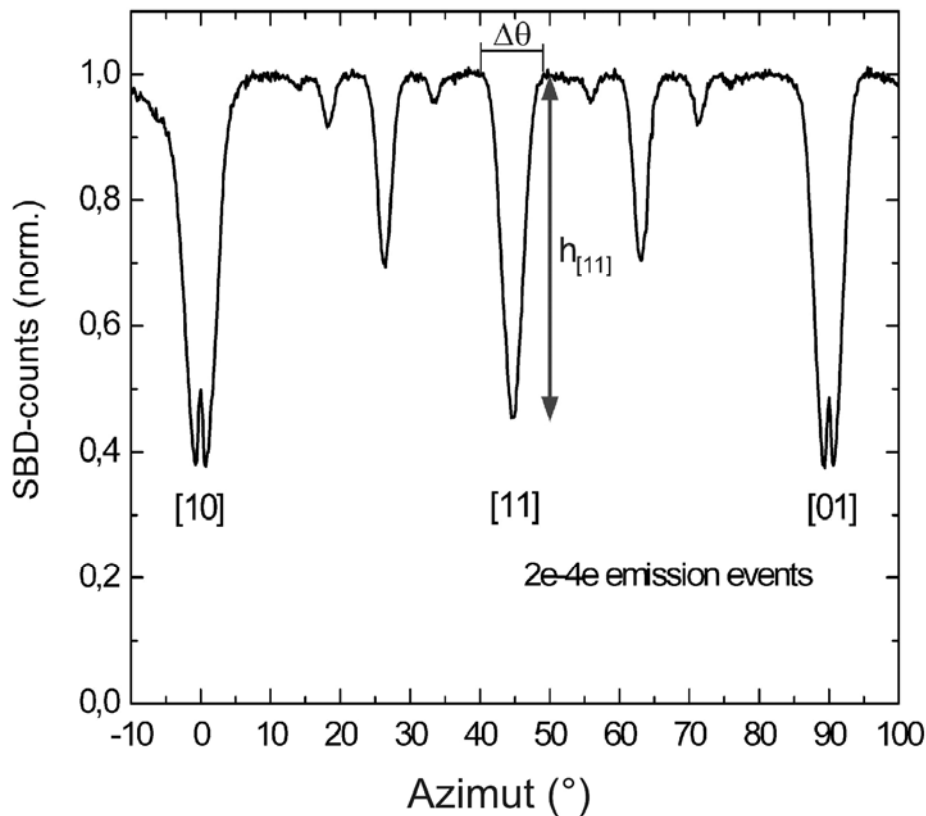


Abb. 6.5: normierte Zählrate des Sperrschichtdetektors (SBD) für den Integrationsbereich der 2 bis 4e Emissionsergebnisse in Abhängigkeit vom azimuthalen Einfallswinkel (IST-Kurve) während der streifenden Streuung ($\phi_{in}=1.6^\circ$) von 29 keV H^0 -Projektilen, normiert wurde auf die Zählrate bei zufälligem Einfall (random), eingezeichnet ist exemplarisch die relative Peakhöhe $h_{[11]}$ und die volle Fußbreite $\Delta\theta$ des [11]-Oberflächenkanals

(Abb.6.4 rechts) bestätigt. Analog zu den in [WM04] gezeigten nichtkoinzidenten Emissionsspektren für He auf Al(111) setzt sich das Emissionsspektrum für axiales Channeling aus zwei sich überlagernden Verteilungen zusammen. Dabei entspricht die Verteilung mit niedrigen Anzahlen emittierter Elektronen (Maximum der Verteilung bei ca. 4e-Ereignissen) Streuprozessen an der Oberfläche. Die im Wesentlichen auf den Atomketten der obersten atomaren Lage stattfindende Streuung weist eine zum Randeinfall ähnliche Emissionsverteilung auf. Die zweite

Verteilung in Bereichen hoher Elektronenemissionsanzahlen (Maximum der Verteilung bei ca. $16e$ -Ereignissen) ist bei planarer Oberflächengitterführung nicht zu beobachten und ist dem in die Oberfläche eindringenden Anteil an Projektilen zuzuordnen. Der aus den Anzahlverteilungen über Gl. 5.10 berechenbare Gesamtstrom emittierter Elektronen weist eine zum Targetstrom identische azimutale Abhängigkeit auf (siehe Abb. 6.3). Demzufolge werden die Targetstrompeaks bei axialer Streuung im Wesentlichen durch oberflächenpenetrierende Projektile hervorgerufen. Sowohl die kaum verifizierbaren Trajektorien dieser Ionenanteile (Reflektion an unterschiedlichen Atomebenen, Wechselwirkungslänge bis zum Wiederaustritt etc.) als auch der damit verbundene Elektronenanregungs-, Transport- und Emissionsprozess lassen auch unter diesem Aspekt eine realistische Simulation von Targetstrom-Triangulationskurven nicht zu.

Das für alle Elektronenanzahlverteilungen konstante Flächenintegral (siehe Abb. 6.4 rechts) entspricht in guter Näherung der Gesamtanzahl gestreuter Projektile. Die beiden bei axialer Streuung auftretenden Elektronenverteilungen erlauben demnach prinzipiell eine Separierung oberflächengestreuter und eindringender Projektile (siehe Abb. 6.4 rechts für die $[10]$ -Richtung). Für die Aufnahme von IST-Kurven wurde mit einem Diskriminator ein bestimmter Integrationsbereich des Spektrums (Inset in Abb. 6.4 rechts, Abb. 6.5) ausgewählt und dieser während der azimutalen Rotation des Targets aufgezeichnet. Die experimentellen Winkellagen der Peaks stimmen auf $\Delta\theta = \pm 0.3^\circ$ mit den theoretischen Positionen überein. Zur Normierung während der Messung auftretender Ionenstrahländerungen dient die gleichzeitige Aufnahme der Gesamtanzahl aller Emissionsereignisse (siehe dazu Kapitel 6.3.). Für die Aufnahme von IST-Kurven ist insbesondere der Integrationsbereich niedriger Elektronenanzahlen (hier: $2-4e$ Ereignisse) attraktiv, da die in Bezug zur Randomstreuung relativen Anteile oberflächenreflektierter Projektile auch quantitativ dem relativen Anteil dieser Emissionsereignisse entsprechen sollten (vgl. Abb. 6.7).

6.2 Das Einbruchkriterium

Bei axialer Einfallsrichtung werden die Projektile an parallelen Atomketten des Oberflächengitters gestreut. Durch das verringerte repulsive Potential zwischen den Atomketten bilden sich

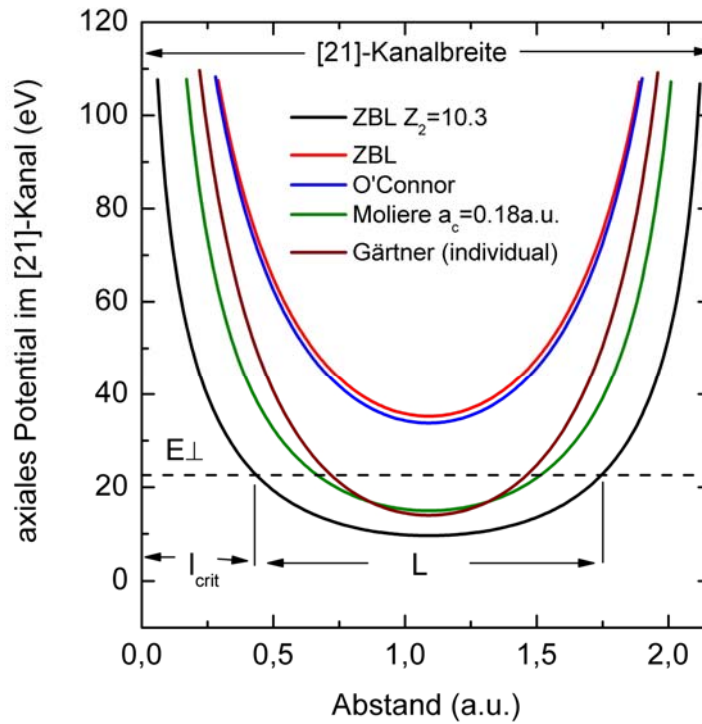


Abb. 6.6: Wechselwirkungspotential zwischen zwei atomaren Ketten der [21]-Oberflächenrichtung für Standardpotentiale (ZBL, O'Connor), für das Individualpotential H auf Cu von Gärtner [GH79] sowie für zwei modifizierte Potentiale: (—) entspricht dabei einem Molierepotential mit einer um 20 % reduzierten Abschirmlänge und für (—) wurde für Cu eine effektive Kernladungszahl von $Z_2=10.3$ angenommen. Das Einbruchkriterium aus Gl. 6.5 ist bei Verwendung der Standardpotentiale für den [21]-Kanal nicht erfüllt, eingetragen ist die Senkrechterenergie (E_{\perp}) der 29 keV H^0 -Projektile ($\phi_{in}=1.6^\circ$), sowie der effektive Eindringbereich L und der kritische Abstand l_{crit}

Kanäle heraus, in denen die Projektile in der Oberfläche axial geführt werden („Hyperchanneling“) oder bei ausreichender Senkrechterenergie E_{\perp} (Gl. 2.1) in die Oberfläche eindringen, d.h. unter die erste atomare Lage gelangen („Subsurface Channeling“). Wie im letzten Abschnitt gezeigt, sind die Änderungen der Anzahlverteilung primär auf Subsurface- Channeling-Effekte zurückzuführen. Als Kriterium für das Eindringen axial einfallender Projektile unter die erste atomare Lage gilt:

$$E_{\perp} > V_{ch}(l) \quad (6.5)$$

Dabei entspricht $V_{ch}(l)$ dem repulsiven Wechselwirkungspotential zwischen zwei betrachteten Atomketten mit l als Abstandskoordinate in der Atomebene. Für niederindizierten Kanäle gilt $d_{ap} \gg a_{corr}$. Dementsprechend setzt sich in guter Näherung das Wechselwirkungspotential im Kanal aus den Zylinderpotentialen zweier benachbarter Atomketten zusammen.

Damit gilt unter Hinweis auf Gl. 6.2:

$$V_{ch}(l) = V_a(l) + V_a(d_{ap} - l) \quad (6.6)$$

Über den aus der Grenzbedingung $E_{\perp} = V_{ch}(l_{crit})$ berechenbaren kritischen Abstand l_{crit} kann der effektive Eindringbereich L des Kanals festgelegt werden (Abb. 6.6):

$$L = d_{ap} - 2l_{crit} \quad (6.7)$$

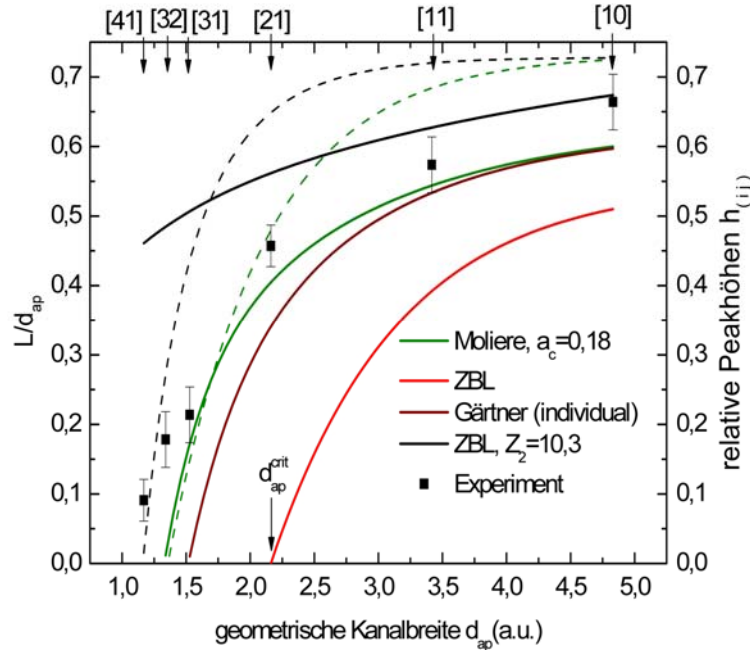


Abb. 6.7: Vergleich der relativen Peakhöhen $h_{[ij]}$ (■) (aus Abb. 6.5) mit der Oberflächentransmission L/d_{ap} (durchgezogene Linien), zur Berechnung von L/d_{ap} (29 keV H auf Cu, $\phi_{in} = 1.6^\circ$) wurden die in Abb. 6.6 beschriebenen Wechselwirkungspotentiale verwendet, die gestrichelten Linien entsprechen dem Verlauf der simulierten Peakhöhen der idealen Cu(001)-Oberfläche (Targettemperatur: $T=0$ K) für das reduzierte Moliere-Potential (---) und für das reduzierte ZBL-Potential (----) (IST-Kurven dazu in Abb. 6.11)

Der effektive Eindringbereich L bestimmt die mittlere Eindringwahrscheinlichkeit und den kritischen azimutalen Winkel θ_{pe} , bei dem die Projektile axial unter die Oberfläche gelangen können. Aus einem geometrischen Projektionsmodell (Abb. 6.9) kann eine Obergrenze für θ_{pe} abgeschätzt werden [BA05]:

$$\sin \theta_{max} = \tan(\phi_{in}) \sqrt{\left(\frac{L + l_{crit}}{z_{min}}\right)^2 - 1} \quad (6.8)$$

wobei z_{min} aus der Bedingung $E_{\perp} = V_a(z_{min})$ zu entnehmen ist. Dementsprechend sollten in den IST-Kurven die Peakhöhen mit L/d_{ap} , d.h. dem Anteil des effektiven Eindringbereiches an der geometrischen Kanalbreite, und die vollen Fußbreiten der Peaks mit $2\theta_{max}$ skalieren. L/d_{ap} entspricht analytisch dem Transmissionsgrad der obersten atomaren Lage. Das Einbruchkriterium, d.h. die Wahrscheinlichkeit der Projektile bei axialer Streuung unter die Oberfläche zu gelan-

gen, hängt über Gl. 6.5 kritisch vom repulsiven Wechselwirkungspotential $V_{ch}(l)$ in den Kanälen ab. Mit abnehmender geometrischer Kanalbreite d_{ap} , wobei für die Cu(001)-fcc-Oberfläche gilt:

$$d_{ap}^{ij} = \sqrt{\frac{a^2}{i^2 + j^2}} \quad (6.9)$$

mit $a=4.82$ a.u. (2.55 \AA), erhöht sich $V_{ch}(l)$. Dabei wird die Abschwächung des Zylinderpotentials durch den höheren interatomaren Abstand der Kettenatome, hier:

$$d_{[ij]} = \sqrt{a^2(i^2 + j^2)} \quad (6.10)$$

überkompensiert. Dementsprechend verringert sich für höher indizierte Kanäle der effektive Eindringbereich L , bis bei einer bestimmten kritischen Kanalbreite d_{ap}^{crit} alle Projektile oberflächenreflektiert werden. Folgt man streng dem Eindringkriterium als Ursache für die bei geringen Emissionsereignissen auftretenden Peakhöhen $h_{[ij]}$, so kann aus dem noch schwach

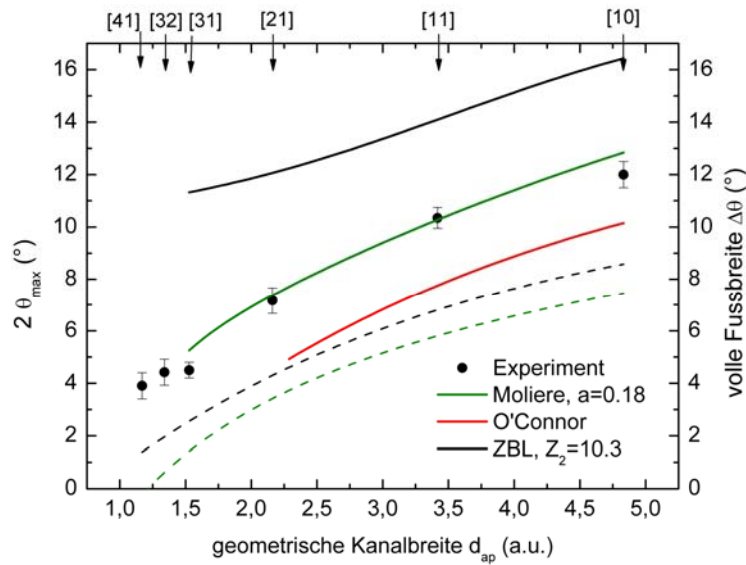


Abb. 6.8: aus der IST-Kurve (Abb. 6.5) entnommene Fußbreite $\Delta\theta$ der einzelnen Kanalpeaks, eingezeichnet sind die über Gl. 6.8 berechnete Obergrenze für den kritischen azimuthalen Winkel: $2\theta_{max}$ für verschiedene Wechselwirkungspotentiale, die quantitative Übereinstimmung von (—) mit den experimentellen Werten ist zufällig (siehe Text), eingezeichnet ist auch der Verlauf der vollen Peakbreiten aus der Simulation ($T=0$ K) für das reduzierte Moliere (---) bzw. ZBL-Potential (----)

erkennbaren [41]-Kanal die kritische Kanalbreite auf $d_{ap}^{crit} \approx 1.17$ a. u. abgeschätzt werden. Abb. 6.7 vergleicht die über die Zylinderpotentialnäherung gewonnene Oberflächentransmission L/d_{ap} in Abhängigkeit von der Kanalbreite d_{ap} mit den relativen Peakhöhen $h_{[ij]}$ der Oberflächenkanäle $[ij]$ aus der IST-Kurve (Abb. 6.5). Für höherindizierte Kanäle ($i+j>3$) nimmt der

Einfluss benachbarter Atomketten auf das betrachtete axiale Potential zu, so dass diese ebenfalls in die Berechnungen einbezogen wurden. Andererseits bricht für diese Kanäle aufgrund des hohen interatomaren Abstandes innerhalb der Ketten (für den [41]-Kanal ist $d_{[41]}=19.9$ a.u.) zunehmend die Zylinderpotentialnäherung zusammen. Abb. 6.7 zeigt, dass die analytische Beschreibung der experimentellen Peakhöhen $h_{[ij]}$ über das Einbruchkriterium kritisch von der Wahl des Wechselwirkungspotentials $U_{ch}(l)$ abhängt. So erweisen sich die unkorrigierten Standardpotentiale (hier exemplarisch für das ZBL-Potential) in diesem Abstandsbereich ($1 \text{ a.u.} \leq l \leq 3 \text{ a.u.}$) als zu repulsiv.

Selbst für den in der IST-Kurve noch deutlich erkennbaren [21]-Kanal ist das Einbruchkriterium unter Verwendung der Standardpotentiale nicht mehr erfüllt (vgl. auch Abb. 6.6). Allerdings beruhen die halbempirisch aufgestellten Standardpotentiale auf der Annahme von isotropen Elektronenladungsverteilung, die die jeweiligen Atomkerne abschirmen (Thomas-Fermi-Modell). Die Elektronendichte in diesem Modell fällt unabhängig von der elektronischen Schalenstruktur monoton mit dem Abstand vom Atomkern. Die in die Abschirmfunktionen eingehende Abschirmlänge a_f (siehe Gl. 5.8) ist weitgehend unbekannt und kann als empirischer Anpassungsparameter behandelt werden. Unter Einbeziehung der Hartree-Fock-Ladungsdichteverteilung beider Stoßpartner können für bestimmte Projektil-Target

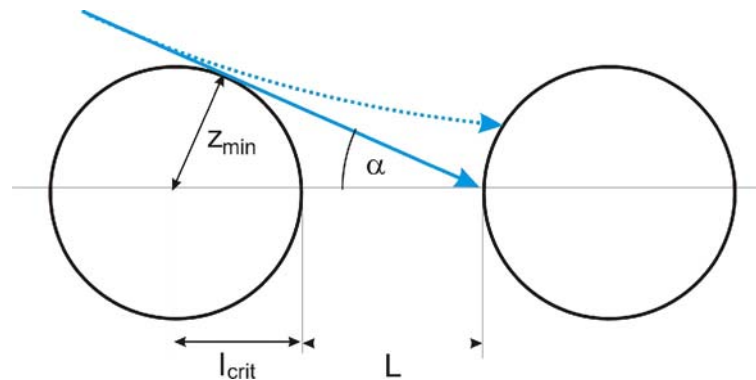


Abb. 6.9: Projektionsmodell zur Herleitung des kritischen azimutalen Einfallswinkels θ_{pe} (Gl. 6.8): schematische Darstellung der Äquipotentiallinien der Zylinderpotentiale bei $V_{ch}=E_{\perp}$; die Atomketten verlaufen senkrecht in die Zeichnungsebene hinein, um das Einbruchkriterium zu erfüllen, kann der Strahl maximal soweit aus der Kanalrichtung gedreht werden, dass die Projektion von ϕ_{in} dem Winkel α entspricht (aus [BA05]); problematisch am Projektionsmodell ist die Vernachlässigung der in diesem Bereich viel flacheren Trajektorie (gestrichelter Pfeil), demnach legt Gl. 6.8 nur eine Obergrenze der IST-Peakbreiten fest

Kombinationen die individuellen Abschirmfunktionen berechnet werden [GH79]. Dieses von Gärtner für Wasserstoff auf Kupfer berechnete Wechselwirkungspotential ist hier deutlich schwächer als die Standardpotentiale (siehe Abb. 6.6), so dass eine erheblich bessere quantitative Übereinstimmung der Oberflächentransmission L/d_{ap} mit den IST-Peakhöhen erzielt wird (Abb. 6.7). Unter Benutzung eines Moliere Potentials (Gl. 5.8) mit einer um

20 % reduzierten Abschirmlänge (hier: $a=0.18$ a.u.) kann im Rahmen der analytischen Näherungen eine quantitative Beschreibung der IST-Peakhöhen erzielt werden.

Alle verwendeten Wechselwirkungspotentiale zeigen eine mit ansteigender Kanalbreite monoton zunehmende Transmission L/d_{ap} . Dementsprechend bleibt die Rangfolge der IST-Peakhöhen ($h_{[10]} \geq h_{[11]} \geq h_{[21]}$ etc.) unabhängig von der Wahl des Wechselwirkungspotentials.

Die analytische Bestimmung der IST-Peakbreiten im Rahmen des Einbruchkriteriums erweist sich allerdings als schwierig, da dazu eine genaue Kenntnis der Projektiltrajektorie erforderlich ist. Die aus dem geometrischen Modell in Abb. 6.9 herleitbaren kritischen Winkel θ_{max} (Gl. 6.8) können nur als Obergrenzen verstanden werden, da die Projektile in diesem Entfernungsbereich unter einem kleineren polaren Winkel als dem geometrischen Einfallswinkel (d.h. $\phi < \phi_{\text{in}}$) auf die Atomketten treffen (Abb. 6.9). Zumindest beschreibt die aus dem Einbruchkriterium geschlussfolgerte funktionelle Abhängigkeit des kritischen azimuthalen Winkels θ_{max} von der geometrischen Kanalbreite die experimentellen IST-Peakbreiten (Abb. 6.8).

Eine quantitative Bestimmung der Peakbreiten auf der Grundlage des Einbruchkriteriums setzt die Simulation der Projektiltrajektorien voraus. Sowohl die eingeschränkte Anwendbarkeit der Zylinderpotentialnäherung als auch der nicht zu vernachlässigende Einfluss atomarer Gitterschwingungen und die Anwendbarkeit der Methode bei komplexeren Oberflächenstrukturen sind weitere Aspekte, die eine Trajektorien-simulation zur Beschreibung der IST-Kurven erforderlich machen.

6.3 Simulation der IST-Kurven mittels Einbruchkriterium

Zur Trajektoriensimulation wurde ein C-basierter Programmcode von S. Lederer und J. Matulevich [LE06] verwendet:

Das Programm simuliert mittels numerischer Eulerintegration [PT02] der Bewegungsgleichungen die Trajektorie eines Atoms, auf das die Einzelpotentiale eines zentral unter dem Projektil befindlichen Clusters von mindestens 5x5x2 Gitteratomen wirken. Verlässt das Projektil den Bereich der zentral im Cluster liegenden Einheitszelle, wird dessen Position um eine Gitterkonstante nachkorrigiert. Die zu integrierenden Newtonschen Differentialgleichungen lauten:

$$\frac{d\vec{v}}{dt} = \vec{a}(\vec{r}) = \frac{-\vec{\nabla}U(\vec{r})}{M_p} \text{ und } \frac{d\vec{r}}{dt} = \vec{v} \quad (6.11)$$

mit der Masse des Projektils M_p und der Überlagerung der geschirmten einzelatomaren Wechselwirkungspotentiale:

$$U(\vec{r}) = \sum_i \frac{Z_1 Z_2}{|\vec{r} - \vec{r}_i|} f\left(\frac{|\vec{r} - \vec{r}_i|}{a}\right) \quad (6.12)$$

Die Gleichungen in 6.11 können bei ausreichend kleinen Zeitschritten τ durch:

$$\frac{d\vec{v}}{dt} = \frac{\vec{v}(t + \tau) - \vec{v}(t)}{\tau} \text{ und } \frac{d\vec{r}}{dt} = \frac{\vec{r}(t + \tau) - \vec{r}(t)}{\tau} \quad (6.13)$$

angenähert werden. Dies führt auf die in der Trajektoriensimulation verwendeten Euler-Berechnungsschritte:

$$\vec{v}(t + \tau) = \vec{v}(t) + \tau \cdot \vec{a}(\vec{r}(t)) + O(\tau^2) \text{ und } \vec{r}(t + \tau) = \vec{r}(t) + \tau \cdot \vec{v}(t) + O(\tau^2) \quad (6.14)$$

Ausgehend von vernachlässigbaren inelastischen Beiträgen während der Streuung wird nach jedem Berechnungsschritt Energie und Impulserhaltung geprüft und wenn nötig nachkorrigiert. Je nach interatomarem Abstand variiert die Schrittweite zwischen 0.01 a.u. $\leq \tau \leq$ 0.1 a.u.. Zur Berechnung der an der Oberfläche reflektierten und in die Oberfläche eindringenden Projektile in Abhängigkeit von der azimuthalen Einfallsrichtung der Projektile sind mehrere tausend Trajektorien pro Winkelschritt erforderlich. Es zeigt sich unabhängig vom benutzten Potential eine diskrete Verteilung der Umkehrpunkte der Trajektorien an den einzelnen Atomebenen (Abb. 6.10). Dementsprechend können oberflächenreflektierte und eindringende Anteile durch die Festlegung einer Grenze zwischen der ersten und der zweiten atomaren Lage voneinander unterschieden werden. Die genaue Position der Eindringgrenze ist unkritisch und wurde für alle folgenden Simulationen auf -1.5 a. u. unterhalb der ersten atomaren Lage festgelegt. In der Si-

mulation beträgt die azimutale Winkelschrittweite $\theta=0.33^\circ$. Die zur Oberfläche senkrechten bzw. parallelen thermischen Auslenkungen (u_\perp , u_\parallel) der Clusteratome werden über die Vorgabe der entsprechenden Oberflächen-Debyetemperaturen ($\Theta_{D\perp}$, $\Theta_{D\parallel}$) berücksichtigt. In der hier verwendeten Hochtemperatur Debye-Näherung gilt:

$$u_{\perp,\parallel} = \frac{\sqrt{6}\hbar}{\sqrt{M_2 k_b \Theta_{D\perp,D\parallel}}} \sqrt{\frac{T}{\Theta_{D\perp,D\parallel}}} \quad (6.15)$$

Bei einer typischen Oberflächendebyetemperatur von $\Theta_D=165$ K ergibt sich bei Raumtemperatur ($T=300$ K) eine maximale thermische Auslenkung von $u=0.02$ Å. Im Vergleich dazu liegt die effektive Kanalbreite des [31]-Oberflächenkanals bei $L=0.17$ Å (Moliere mit $a=0.18$), was eine Beeinflussung der Oberflächentransmission durch thermische Effekte insbesondere für höherindizierte Kanäle erwarten lässt. Im Streuexperiment liegen die Projektil-Oberflächen-

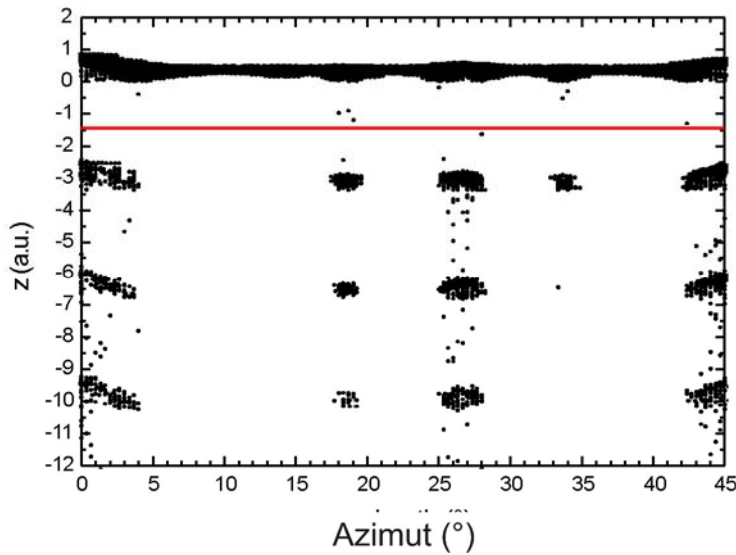


Abb. 6.10: z-Koordinate der Trajektorienumkehrpunkte, für jeden azimutalen Einfallswinkel wurden 1000 Projektiltrajektorien berechnet, die Umkehrpunkte verteilen sich weitgehend diskret auf die einzelnen Atomlagen bei $z=0$ a.u., -3.416 a.u., -6.832 a.u. und -10.247 a.u.; die rote Linie markiert die festgesetzte Eindringgrenze bei $z=-1.5$ a.u. als Potential wurde ein abgeschwächtes ZBL-Potential ($Z_2=10.3$) verwendet

Wechselwirkungszeiten im Bereich von fs. Aufgrund der weit geringeren Phononenfrequenzen von ca. 10^{12} Hz wechselwirkt das Projektil mit einer „eingefrorenen“ Oberfläche. Da für die Simulation das Projektil bei jedem Schritt über die Einheitszelle im Zentrum des Clusters projiziert wird, ist eine realistische Berücksichtigung der Proben temperatur nicht möglich. In der Simulation wird die thermische Auslenkung der Atome durch die Neuberechnung der Atompositionen nach jedem Integrationsschritt angenähert. Diese einfache Berücksichtigung der thermodynamischen Auslenkungen und der ungenaue Verlauf des verwendeten Wechselwirkungs-

potentials müssen durch die Anpassung einer entsprechenden parallelen und senkrechten Debyetemperatur ausgeglichen werden. Dementsprechend stehen der Simulation insgesamt drei Anpassungsparameter zur Verfügung: das Wechselwirkungspotential sowie die parallele bzw. senkrechte Oberflächen-Debyetemperatur. Diese Parameter wurden über die Anpassung an die experimentelle Cu(001)-IST-Kurve festgelegt und weitgehend für alle Struktursimulationen beibehalten. Abb. 6.11 zeigt den aus der Simulation folgenden Anteil oberflächenreflektierter Projektile bei ideal glatter Oberfläche ($T=0\text{K}$) für zwei Wechselwirkungspotentiale (—). Wie aus den analytischen Überlegungen zur Oberflächentransmission L/d_{ap} (Abb. 6.7) zu erwarten

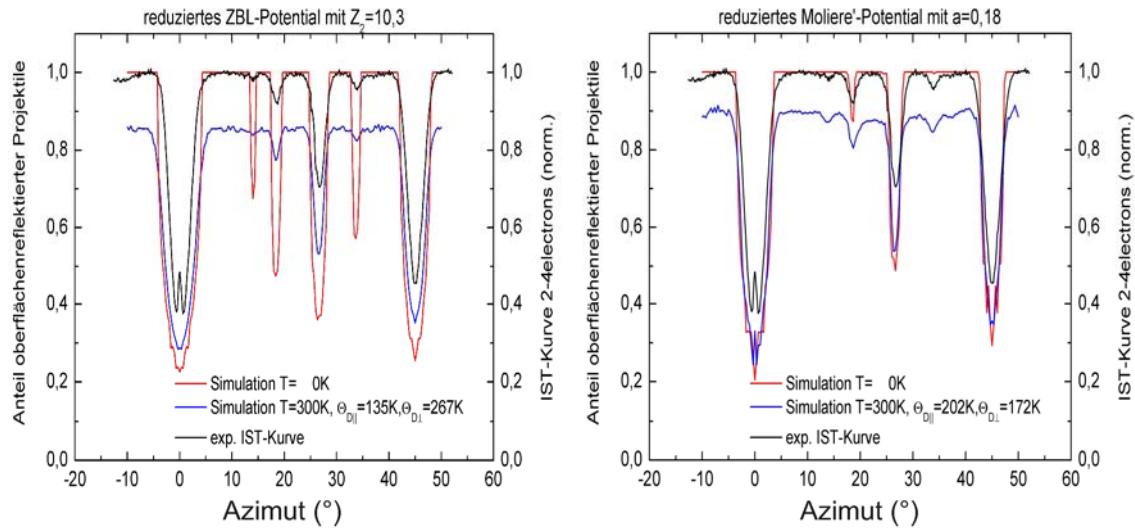


Abb. 6.11: links: Aus der Simulation folgender Anteil oberflächenreflektierter Projektile in Abhängigkeit vom azimuthalen Einfallswinkel (29 keV H auf Cu(001), $\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$) bei einer Targettemperatur von $T=0\text{ K}$ (—) und von $T=300\text{ K}$ (—), benutzt wurde ein reduziertes ZBL-Potential mit einer effektiven Kernladungszahl für Cu von $Z_2=10.3$, die beste Anpassung der Simulation an die exp. IST-Kurve (norm. Anzahl der 2-4e Emissionsereignisse, Messung bei Raumtemperatur, (—)) wurde mit $\Theta_{D\perp}=267\text{ K}$ und $\Theta_{D\parallel}=135\text{ K}$ erzielt. rechts: analog zur linken Abb. mit einem Molierepotential und reduzierter Abschirmlänge $a=0.18$, die beste Anpassung an die exp. IST-Kurve wurde mit $\Theta_{D\perp}=172\text{ K}$ und $\Theta_{D\parallel}=202\text{ K}$ erzielt, der in der Messung auftretende Einbruch bei $\theta=0^\circ$ ([10]-Kanal) ist auf eine erhöhte Reflektivität durch den Einfluss der zweiten atomaren Lage zurückzuführen, durch eine zeitintensive Fein Anpassung des Potentials und Verschiebung der Eindringgrenze kann diese Struktur über die Simulation nachvollzogen werden

war, zeigt das schwächere ZBL-Potential ($Z_2=10.3$, Abb. 6.11 links) im Vergleich zum korrigierten Moliere-Potential (Abb. 6.11 rechts) deutlich stärkere Peakhöhen. Die Anteile eindringender Projektile in Abhängigkeit von der Kanalbreite unterscheiden sich in der Simulation ($T=0\text{ K}$) von der analytischen Abschätzung L/d_{ap} (gestrichelte und durchgezogene Linien in Abb. 6.7). Diese Unterschiede sind auf die Einbeziehung von Trajektorieneffekten in der Simulation zurückzuführen. So erhöht sich in der Simulation die Ionendichte in niederindizierten Kanälen (Fokussierungseffekt). Zur Berechnung von L/d_{ap} wurde dieser Effekt nicht berücksichtigt. Vielmehr wurde von einer isotropen Verteilung der Projektile auf der Oberfläche ausgegangen.

Der Fokussierungseffekt erklärt die höhere Transmission in der Simulation bei niederindizierten Kanälen ($i+j < 3$). Für höherindizierte Kanäle bricht zunehmend die Zylinderpotentialnäherung zusammen, was zu einer Überschätzung der Eindringwahrscheinlichkeit durch L/d_{ap} führt. Trotz dieser Unzulänglichkeiten ist die analytische Abschätzung für das grobe Anpassen der Wechselwirkungspotentiale hilfreich. Erwartungsgemäß liegen auch die vollen Peakbreiten aus der Simulation für $T=0$ K (starres Gitter) weit unter den durch das Projektionsmodell vorgegebenen

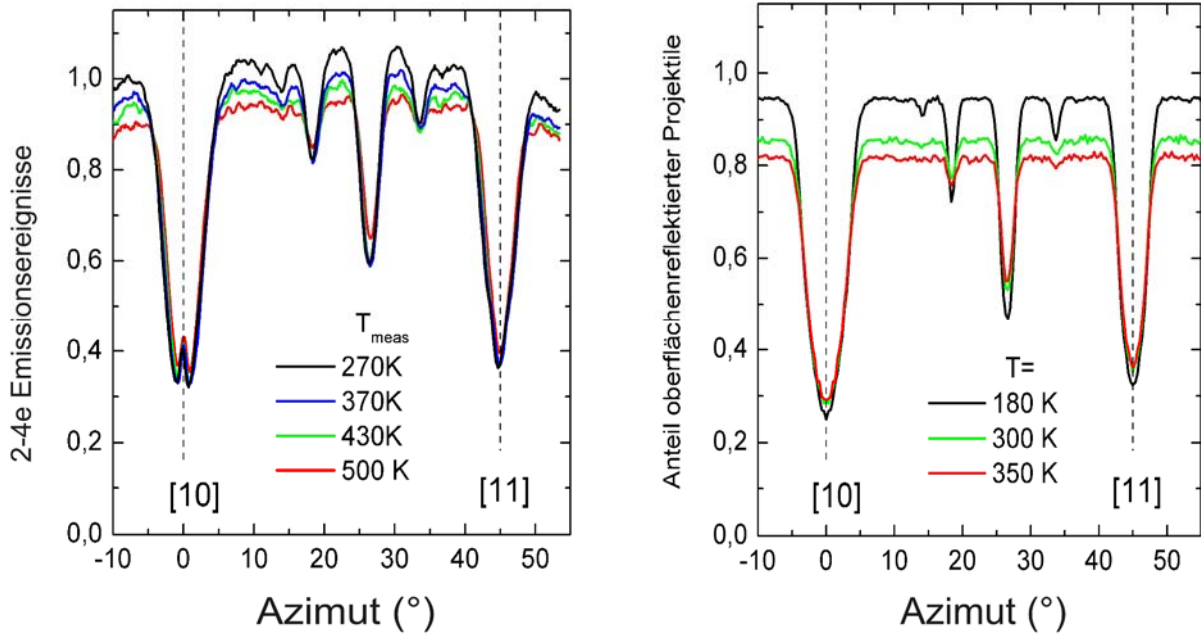


Abb. 6.12: links: IST-Kurven (2-4e Ereignisse) während der Streuung von 29 keV H^0 auf Cu(001) ($\phi_{in}=1.6^\circ$) während des Abkühlens des Kristalls von 500 K auf 270 K, alle IST-Kurven wurden auf die Randomsignale der 270 K Messung normiert, rechts: Anteil oberflächenreflektierter Projektile aus der Simulation unter gleichen Streubedingungen, benutzt wurde ein reduziertes ZBL-Potential ($Z_2=10.3$) mit den Anpassungsparametern $\Theta_{D\perp}=267$ K, $\Theta_{D\parallel}=135$ K, die exp. IST-Kurven und die Simulationen zeigen, dass die bei zunehmender Temperatur erhöhten thermischen Auslenkungen der Oberflächenatome das Eindringen der Projektile in zufälliger azimuthaler Einfallsrichtung erleichtern (Verringerung der Randomsignale) und höherindizierte Kanäle schließen

Maximalwerten $2\theta_{max}$ (gestrichelte und durchgezogene Linien in Abb. 6.8).

Über die Anpassung der senkrechten und parallelen Debyetemperatur kann sowohl für das reduzierte Molire als auch für das reduzierte ZBL-Potential sehr gute Übereinstimmung der simulierten Oberflächenreflektivität mit der experimentellen IST-Kurve erzielt werden (vergleiche blaue und schwarze Kurven in Abb. 6.11). Dabei zeigt sich, dass eine erhöhte Auslenkung der Oberflächenatome senkrecht zur Oberfläche (Reduzierung von $\theta_{D\perp}$) die Reflektivität im Bereich planarer Oberflächengitterführung (Randomeinfall) verringert. Zu beobachten ist auch eine leicht erhöhte Eindringwahrscheinlichkeit entlang der Kanäle, so dass mit Einschalten der Temperatur auch Kanäle geöffnet werden deren Kanalbreite unter der kritischen Kanalbreite d_{ap}^{crit} liegen.

So ist erst nach Einschalten der Temperatur in der Simulation mit reduziertem Molierepotential (Abb. 6.11 rechts) der [41]- bzw. der [32]-Oberflächenkanal zu erkennen. Die gaußförmige Verbreiterung der Peakfüße ist ebenfalls auf die senkrechten thermischen Atom-Auslenkungen zurückzuführen. Demzufolge wird ausgehend vom Einbruchkriterium die quantitative Fußbreite der experimentellen IST-Kurven maßgeblich durch die thermischen Vibrationen der Oberflächenatome mitbestimmt.

Im Gegensatz dazu hat die Reduzierung der parallelen Debytemperatur kaum Auswirkungen auf die Reflektivität in zufälliger azimuthaler Einfallsrichtung. Allerdings führt die erhöhte laterale Auslenkung der Oberflächenatome zur Verringerung der Eindringwahrscheinlichkeit insbesondere bei höherindizierten Kanälen. Über die Debytemperaturen als Anpassungsparameter in der Simulation können weder die azimuthale Winkellage auftretender Peaks noch die Rangfolge der Peakhöhen (d.h. $h_{[10]} > h_{[11]} > h_{[21]}$) geändert werden. Mit dieser einfachen Einbeziehung der Oberflächentemperatur in die Trajektorien-simulation sind qualitativ die temperaturabhängigen Änderungen der experimentellen IST-Kurven über die Simulation bei verschiedenen Messtemperaturen nachvollziehbar (Abb. 6.12). Eine Erhöhung der Targettemperatur von 270 K auf 500 K führt bei zufälligem azimuthalen Einfall der Projektile (Randomrichtung) zu einer Verringerung der 2-4e Emissionsereignisse, bei gleichzeitiger Zunahme höherer Elektronenanzahlen (Abb. 6.12 links). Ausgehend vom Einbruchkriterium folgt daraus, dass bei ansteigender Targettemperatur mehr Projektile unter die erste atomare Lage gelangen können. Bei axialem Einfall der Projektile wird das Eindringen der Ionen mit zunehmender Targettemperatur dagegen erschwert, gekennzeichnet durch eine leichte Erhöhung der niedrigen Emissionsereignisse im Vergleich zur Messung bei $T_{\text{meas}} = 270$ K. Zu erkennen ist dies z.B. an der Peakintensität des [21]-Oberflächenkanals in Abb. 6.12. links. Dementsprechend werden die Peakhöhen sowohl durch die absinkenden Randomsignale als auch durch die ansteigenden Zählraten in den Kanal-peaks reduziert. Diese temperaturabhängige Entwicklung der experimentellen IST-Kurven kann durch die Simulation bei verschiedenen vorgegebenen Targettemperaturen nachvollzogen werden (Abb. 6.12 rechts). In der Simulation wurden die angepassten Debytemperaturen ($\Theta_{D\perp} = 267$ K, $\Theta_{D\parallel} = 135$ K) und das reduzierte ZBL-Wechselwirkungspotential verwendet. Durch die Erhöhung der Messtemperatur nehmen die Auslenkungen der Oberflächenatome gemäß Gl. 6.15 zu. Analog zu den Schlussfolgerungen aus der Messung zeigt auch die Simulation mit zunehmender Temperatur eine erhöhte Transmission bei Randomstreuung und eine durch laterale Auslenkungen verringerte Transmission bei axialem Ioneneinfall.

Die Messung der Anzahlverteilung emittierter Elektronen bei der streifenden Ionenstreuung ermöglicht die Selektion von Emissionsereignissen, die an der Oberfläche bzw. in tieferen atomaren Lagen stattfinden. Bei azimuthaler Drehung der einkristallinen Targetoberfläche nehmen bei Einfall der Projektile entlang dichtgepackter Atomketten Emissionsereignisse mit niedrigen Elektronenanzahlen ab (IST-Kurve). Im Rahmen des Einbruchkriteriums wird diese Reduzierung auf Projektilanteile zurückgeführt, die axial unter die erste atomare Lage gelangen und dort hohe Elektronenanzahlen auslösen.

Zur Bestimmung der oberflächenreflektierten Projektilanteile in Abhängigkeit vom azimuthalen Einfallswinkel wurde ein Trajektoriensimulationsprogramm verwendet, in dem Projektile, die unter die erste atomare Lage gelangen, als eingedrungen gewertet werden. Durch die Anpassung von drei Simulationsparametern (parallele und senkrechte Debyetemperatur, Wechselwirkungspotential) kann eine quantitative Übereinstimmung der simulierten Oberflächenreflektivität mit den experimentellen IST-Kurven an der atomar glatten Cu(001)-Oberfläche erzielt werden.

6.4 Oberflächensensitivität der Ionenstrahltriangulation

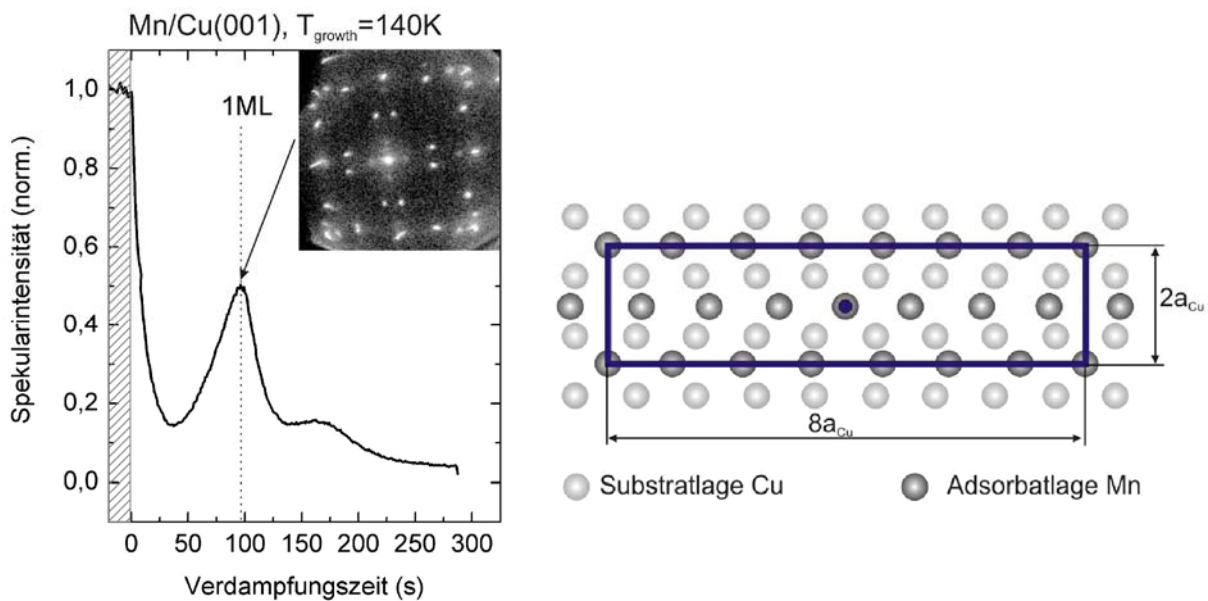


Abb. 6.13: links: Intensität spekulär reflektierter 25 keV He^0 -Projektile während der Deposition von Mn auf Cu(001), bei einer Wachstumstemperatur von $T_{\text{growth}} = 140\text{ K}$ und einer Depositionsrate von $p = 0,01\text{ ML/s}$, für die IST- und LEED-Messungen wurde die Mn-Deposition nach einer Monolage beendet, das Inset zeigt ein mit dem SPA-LEED aufgenommenes Beugungsbild ($E_c = 53\text{ eV}$) von 1 ML Mn auf Cu(001) unmittelbar vor der Aufnahme der IST-Kurve in Abb. 6.14; rechts: $c(8 \times 2)$ -Strukturvorschlag von Gauthier et al. [GP93] für 1 ML Mn/Cu(001) ($T_{\text{growth}} = 200\text{ K}$), die Mn-Decklage ordnet sich quasihexagonal in zwei senkrecht zueinander stehenden Domänen auf der einfach quadratischen Cu(001)-Substratlage an

Die Betrachtungen zum Einbruchkriterium in den vorigen Abschnitten legen eine auf die oberste atomare Lage beschränkte Informationstiefe der Ionenstrahltriangulation nahe. Zur experi-

mentellen Bestimmung der Oberflächensensitivität der IST-Methode wurden Triangulationsmessungen an einer hexagonal rekonstruierten Mn-Adsorbatlage auf Cu(001) durchgeführt. Abb. 6.13 links zeigt die Intensität spiegelnd reflektierter He^0 -Projekte (25 keV, $\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$) während des Wachstums von Mn auf Cu(001) bei einer Wachstumstemperatur von $T_{\text{growth}}=140$ K und einer Depositionsrate von $p=0.008$ ML/s. Für die IST-Messung wurde die Deposition bei Erreichen des ersten Intensitätsmaximums beendet. Anschließend durchgeführte LEED-Messungen weisen eine zu früheren Untersuchungen anderer Arbeitsgruppen ([FH92],[GP93])

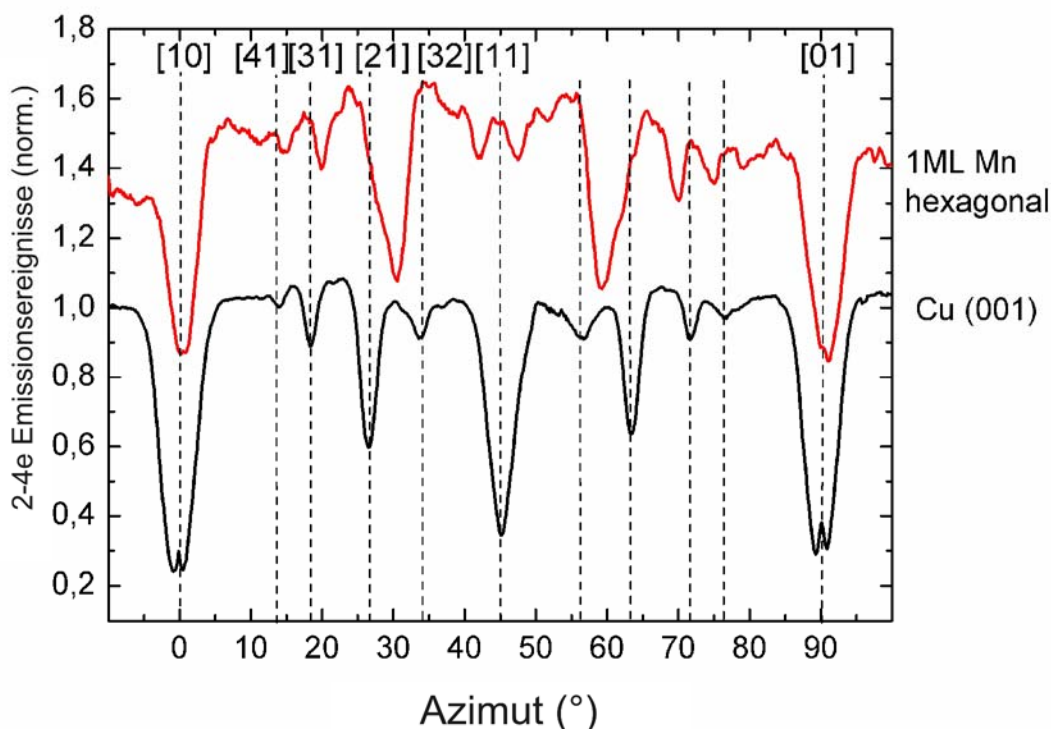


Abb. 6.14: Anzahl der 2-4e Emissionsereignisse während der azimuthalen Drehung des Targets um 90° (29 keV H^0 , $\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$) vor (—) und nach der Deposition einer Monolage Mn auf Cu(001) ($T_{\text{growth}}=140$ K, $p=0.01$ ML/s) (—), die rote Kurve wurde zur besseren Übersicht verschoben; das LEED-Bild in Abb. 6.13 links wurde unmittelbar vor der hier dargestellten 1 ML Mn/Cu(001)-IST-Kurve aufgenommen, eingezeichnet sind die Winkellagen dichtgepackter Atomreihen der quadratischen Cu(001)-Substratoberfläche

identische Anordnung von Überstrukturreflexen auf. Das von Gauthier *et al.* [GP93] mittels I/V-LEED Analyse aufgestellte Strukturmodell dieser Mn-c(8x2)-Tiefemperaturphase zeigt Abb. 6.13 rechts. Die Mn-Atome ordnen sich demnach quasihexagonal auf der Cu(001)-Oberfläche an, wobei aufgrund der vierzähligen Drehsymmetrie der Substratunterlage, eine um 90° gedrehte zweite Domänenorientierung der Mn-Decklage mit einzubeziehen ist. In Abb. 6.14 werden IST-Messungen für 2-4e Emissionsereignisse vor und nach dem Aufdampfen einer Monolage Mn auf Cu(001) ($T_{\text{growth}}=140$ K) gegenübergestellt. Die beiden auftretenden hexagonalen Domänen der Mn-Überstruktur orientieren sich entlang der primitiven $[10]_{\text{sc}}$ bzw. $[01]_{\text{sc}}$ -Richtung der Cu(001)-Substratoberfläche (Gitterrichtungen mit dem Index „sc“ beziehen sich auf die quadratischen Basisvektoren der Substratoberfläche). Dementsprechend zeigt die an der

Mn-Schicht aufgenommene IST-Kurve ebenfalls dichtgepackte Atomreihen entlang der $[10]_{sc}$ - ($\theta=0^\circ$) bzw. $[01]_{sc}$ - ($\theta=90^\circ$)-Oberflächenrichtung. Da nur jeweils eine der beiden hexagonalen Domänen eine dichtgepackte Reihe, z.B. entlang der $[10]_{sc}$ -Richtung, aufweist, folgt eine Verringerung der $[10]_{sc}$ bzw. $[01]_{sc}$ -Intensitätshöhen im Vergleich zur Messung am Cu-Substrat. Von diesen geometrischen Vorzugsrichtungen abgesehen, weisen alle in der Mn-Triangulationskurve auftretenden Peaks im Vergleich zur Cu(001)-Unterlage veränderte azimutale Winkellagen und Intensitäten auf. Die asymmetrische Peakform der dichtgepackten Reihen bei $\theta \approx 30^\circ$ bzw. 60° wird nicht durch Anteile der $[21]_{sc}$ -Gitterrichtung der Unterlage hervorgerufen, sondern resultiert aus der Überlagerung der beiden hexagonalen Mn-Domänen. Eine genaue Analyse der hier vorliegenden Mn-Struktur und ein Vergleich mit dem $c(8 \times 2)$ -Strukturvorschlag aus [GP93] erfolgt in Kapitel 7. In diesem Abschnitt wird die präparierte Mn-Monolage im Wesentlichen zur Demonstration der Oberflächensensitivität der IST-Methode genutzt. Insbesondere die vollständige Auslöschung der in der Cu-Unterlage prominenten $[11]_{sc}$ -Gitterrichtung durch die hexagonale Mn-Decklage weist daraufhin, dass die Oberflächensensitivität der IST-Methode, zumindest für die hier ausgewählten niedrigen Emissionsereignisse (2-4e), auf die oberste atomare Lage beschränkt ist. Dementsprechend finden diejenigen Streuereignisse, die zur Emission weniger Elektronen führen, in der ersten Atomlage der Oberfläche statt. Dieser experimentelle Befund stützt die Festlegung der Einbruchgrenze zwischen der ersten und der zweiten atomaren Lage in der IST-Simulation für die Cu(001)-Oberfläche (Abb. 6.10).

Die auf die oberste atomare Lage beschränkte Informationstiefe der IST-Methode kann weitgehend auch auf raue Film- oder Oberflächenstrukturen übertragen werden:

Analog zur Abnahme der spekulär reflektierten Projektilanteile verringert sich bei rauem Filmwachstum auch die Anzahl an niedrigen Emissionsereignissen bei entsprechender Zunahme von Emissionsereignissen, die eine hohe Anzahl an austretenden Elektronen erzeugen. Wie anhand der Wachstumsuntersuchungen in Kap. 5.4. gezeigt wurde, geht diese Verschiebung der Anzahlverteilung emittierter Elektronen auf die bei rauen Oberflächen erhöhte Stufenkantenwechselwirkung der gestreuten Projektil zurück. Dementsprechend fallen Emissionsereignisse an Stufenkanten wegen der damit verbundenen erhöhten Anzahl emittierter Elektronen aus dem für die IST-Kurven festgelegten Integrationsbereich von 2-4e Ereignissen heraus. In erster Näherung werden durch die Selektion niedriger Elektronenanzahlen nur solche Streuprozesse in der IST-Messung berücksichtigt, die weitgehend ungestörte Trajektorien an defektarmen Regionen der Oberfläche aufweisen.

Mit zunehmender Rauigkeit werden diese „idealen“ Streu- und Anregungsprozesse immer seltener, was insgesamt zu einer Reduzierung der Ausgangszählrate (d.h. Zählrate bei planarer Gitterführung) führt. Ausgehend von einem konstanten elektronischen Offset in den Anzahlverteilungen hat die rauigkeitsbedingte Reduzierung der Randomzählrate ebenfalls eine Verringerung der messbaren Peakhöhen zur Folge. Aufgrund der hohen Oberflächensensitivität und der Selbstnormierung der Messmethode (siehe Kap. 6.4) können trotzdem wichtige strukturelle Informationen auch an rauen Filmen gewonnen werden. Auf diesen Aspekt der Ionenstrahltriangulation wird in Kapitel 7 eingegangen.

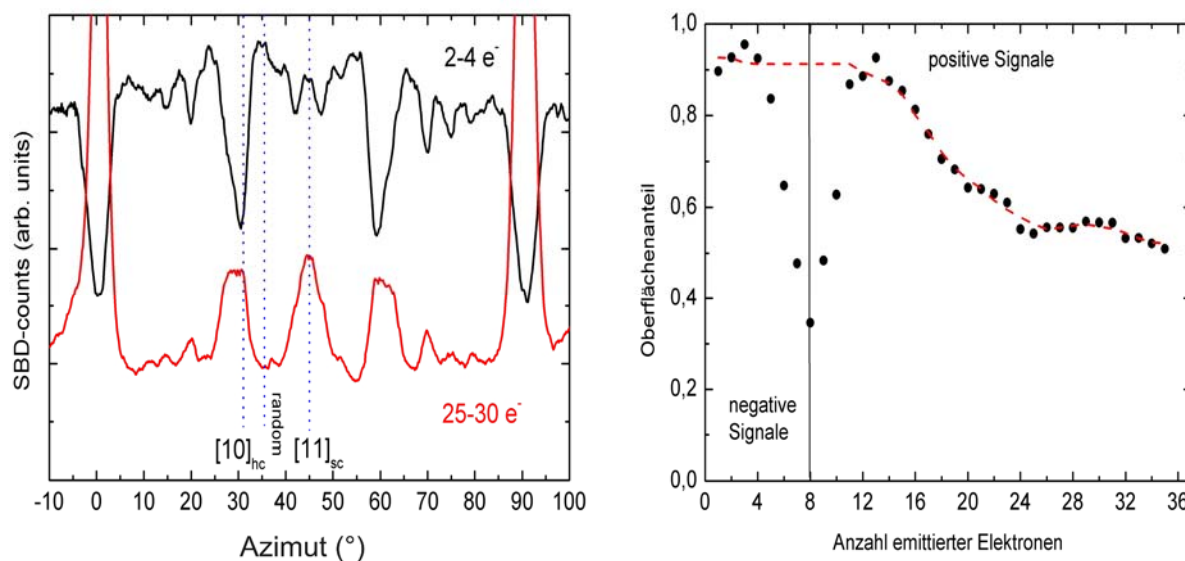


Abb. 6.15 links: IST-Kurven (29 keV H^0 $\phi_{in}=1.6^\circ$) an 1 ML Mn/Cu(001) für 2-4e Emissionsereignisse (—) und für 25-30e Emissionsereignisse (—); Im Gegensatz zu der Triangulationskurve im Bereich niedriger Elektronenanzahlen, deren Peaks ausschließlich durch die hexagonale Mn-Decklage erzeugt werden (charakteristisch für diese Struktur ist der $[10]_{hc}$ -Kanal), weisen die Triangulationskurven höherer Elektronenanzahlen zunehmend Signaturen des Cu(001)-Substrates auf, zu erkennen am Anwachsen des $[11]_{sc}$ -Peaks bei $\theta=45^\circ$, eingezeichnet sind die Winkelbereiche, die zur quantitativen Auswertung der Peakverhältnisse (rechte Abb.) verwendet wurden; rechts: dargestellt ist der Quotient $\frac{h_{[10]}^{hc}}{h_{[11]}^{sc} + h_{[10]}^{hc}}$ als Maß für den Signalanteil der obersten atomaren Lage an den IST-Kurven in Abhängigkeit von der Elektronenanzahl.

Für die Untersuchung der Informationstiefe von IST-Kurven in Abhängigkeit vom gewählten Integrationsbereich (siehe Abb. 6.4 rechts) wurde während der Targetdrehung nach jedem Winkelschritt eine Anzahlverteilungen aufgenommen. Aus den azimutalwinkelabhängigen Emissionsspektren können so IST-Kurven für jeden beliebigen Bereich der Anzahlverteilung erstellt werden. Bei einer idealen Oberfläche wird der Übergang von planarer Oberflächengitterführung zu axialer Streuung durch die Atomanordnung der obersten Lage bestimmt. Demzufolge sollten die dabei auftretenden *Änderungen* der Elektronenemission ebenfalls nur von der Geometrie der obersten atomaren Lage abhängen, unabhängig davon wie die Emissionsprozesse im Einzelnen stattfinden. Speziell heißt das, bei einer idealen Oberfläche sollte unabhängig vom gewählten Integrationsbereich innerhalb der Anzahlverteilung emittierter Elektronen die Informationstiefe

der IST-Kurven auf die erste atomare Lage beschränkt sein.

Abb. 6.15 links zeigt exemplarisch IST-Kurven für niedrige (2-4e) und hohe Elektronenanzahlen (32-34e), die an der 1 ML Mn/Cu(001)-Schicht aufgenommen wurden. Zu erkennen ist, dass die IST-Kurven für die Integration über hohe Elektronenanzahlen zunehmend Signaturen der quadratischen Cu-Substratatomordnung aufweisen, einhergehend mit der Reduzierung der Beiträge aus der hexagonalen Mn-Decklage. Für eine quantitative Abschätzung der Oberflächensensitivität in Abhängigkeit von der in den IST-Kurven benutzten Elektronenanzahl wurden in den einzelnen IST-Kurven die relativen Peakhöhen der $[10]_{hc}$ -Richtung ($h_{[10]}^{hc}$) bei $\theta=30^\circ$, bestimmt durch die Mn-Decklage, und der $[11]_{sc}$ -Richtung ($h_{[11]}^{sc}$) bei $\theta=45^\circ$, bestimmt durch die tiefere Cu-Substratlage, ausgemessen. Als Bezugspunkt für das Signal bei zufälligem Einfall wurde die Intensität bei $\theta=36^\circ$ gewählt (markierte Bereiche in Abb. 6.15 links). Der Quotient $h_{[10]}^{hc}/(h_{[10]}^{hc} + h_{[11]}^{sc})$ gibt in erster Näherung den aus der Mn-Decklage stammenden Signalanteil der jeweiligen IST-Kurve an (Abb. 6.15 rechts). Demzufolge weisen die IST-Kurven für Streuereignisse, die zur Emission von 2-14 Elektronen führen, eine weitgehend konstante, auf die Mn-Decklage beschränkte strukturelle Informationstiefe auf. Der Einbruch im Anzahlbereich von 6-10 Elektronen resultiert aus den sich schneidenden Anzahlverteilungen für planare und axiale Streuung (siehe Abb. 6.4 rechts). Im Anzahlbereich von 14 bis 24e Emissionsergebnissen nehmen die Signalanteile der oberen Mn-Lage linear ab, einhergehend mit der Zunahme der $[11]_{sc}$ -Peakintensitäten des Cu-Substrates, bis im Bereich von 24 bis 36 Elektronen zu gleichen Anteilen die Mn-Struktur und die tieferen Cu-Lagen die Signale der IST-Kurven bestimmen. Ursächlich für die bei hohen Elektronenanzahlen auftretenden Signalbeiträge tieferer Lagen sind Abweichungen von der idealen Oberfläche wie Stufenkanten, Punktdefekte, thermische Vibrationen, unvollständige Bedeckung etc.. Aufgrund dieser Oberflächendefekte dringt auch bei zufälligem Einfall ein geringer Projektanteil in tiefere Lagen vor, einhergehend mit einer erhöhten Elektronenemission. Finden diese Projektile dort einen axialen Kanal vor (hier entlang der $[11]_{sc}$ -Atomketten), führt die einsetzende axiale Gitterführung in der Subsurface-Region zusätzlich zu einer Erhöhung der Anzahl emittierter Elektronen. Diese Prozesse überlagern sich mit dem an der Oberfläche stattfindenden Einbruch bei axialer Streuung. Da Targetstromkurven, wie in Abb. 6.3 gezeigt, maßgeblich durch Emissionen mit hohen Elektronenanzahlen bestimmt werden, müssen dort beide Prozesse berücksichtigt werden. Dementsprechend ist die direkte Anwendung des Einbruchkriteriums zur Simulation von *Targetstromkurven* weitgehend ungeeignet. Weiterhin kann aus der hier gezeigten Untersuchung nicht entnommen werden, wie viele Cu-Substratlagen an der Erzeugung des $[11]_{sc}$ -Signals beteiligt sind. Allerdings zeigen analoge Untersuchungen an einer ebenfalls hexagonalen 2 ML Mn/Cu(001)-

Struktur auch bei hohen Elektronenanzahlen kaum noch fcc(001)-Signaturen (hier nicht gezeigt). Daraus kann zum einen auf eine hexagonale Rekonstruktion beider Mn-Lagen geschlossen werden, zum anderen deutet dies daraufhin, dass die Erzeugung des $[11]_{sc}$ -Peaks in Abb. 6.15 links, im Wesentlichen auf die oberste Cu(001)-Substratlage zurückzuführen ist. Insgesamt eröffnet die Erhöhung der Informationstiefe mit steigender Elektronenanzahl prinzipiell die Möglichkeit, auch Strukturuntersuchungen tieferer Lagen durchzuführen.

6.5 Normierung der IST-Kurven

Die wesentlichen Vorteile der auf der Anzahlverteilung basierenden Variante der Ionenstrahltriangulation im Vergleich zum azimutabhängigen Targetstrom sind:

- (1) eine definierte und für niedrige Elektronenanzahlen auf die oberste atomare Lage beschränkte Informationstiefe,
- (2) eine einfache theoretische Beschreibung der IST-Kurven über das Einbruchkriterium,
- (3) keine Sputtereffekte aufgrund extrem geringer Ionenströme (\sim sub fA)

Ein weiterer Vorteil liegt in der Möglichkeit, die Messsignale der IST-Kurven über die Gesamtanzahl der auftretenden Emissionsereignisse zu normieren. Für die hier verwendeten Streubedingungen ist annähernd jeder Streuprozess mit der Emission von mindestens zwei Elektronen verbunden. Demzufolge sollte unabhängig von der in der IST-Kurve verwendeten azimutalen Abhängigkeit eines speziellen Bereichs der Anzahlverteilung die Gesamtzahl der Emissionsereignisse konstant bleiben. Die Gesamtheit der in der Anzahlverteilung registrierten Emissionsereignisse entspricht annähernd der Anzahl an der Oberfläche gestreuter Ionen. Auftretende Ionenstrahlschwankungen (Langzeitdrifts, Fluktuationen etc.) können über die synchrone Aufzeichnung des integralen Signals (hier ca. 2-40e Emissionsereignisse) während der Messung registriert und direkt normiert werden. Abb. 6.16 links zeigt eine typische Triangulationsmessung (2-4e Ereignisse) bei gleichzeitiger Registrierung der Gesamtereignisse. Zu erkennen ist, dass das Normierungssignal beim Übergang von planarer zu axialer Streuung kaum beeinflusst wird. Die im Normierungssignal auftretenden geringen Intensitätsüberhöhungen von weniger als 10 % sind auf einen entsprechend kleinen Anteil an Emissionsprozessen zurückzuführen, die bei zufälliger azimutaler Einfallsrichtung weniger als zwei Elektronen auslösen. Dieser Anteil kann durch eine Verbesserung der Elektronenüberführung in den Detektor und durch Erhöhung des Emissionskoeffizienten, z.B. durch die Wahl einer höheren Projektilprimärenergie, verringert werden. Die während der Messzeit (typ.: 6-10 min je IST-Kurve) aufgetretene kontinuierliche Zunahme der Ionenstrahlintensität und kurzzeitig auftretende Fluktuationen sind streng korreliert zur Gesamtanzahl der vom Detektor registrierten Emissionsereignisse, so dass die normierte IST-Kurve (Abb. 6.16 rechts) weitgehend unabhängig von den Schwankungen der abso-

luten Ionenintensität ist. Die bei der azimuthalen Drehung auftretende geringfügige Änderung des polaren Einfallswinkels ($\Delta\phi=0.1^\circ$) führt zu einer Verschiebung der Anzahlverteilungen und kann dementsprechend nicht durch die Normierung erfasst werden. Dies könnte ein möglicher Grund für die während der Targetdrehung auftretenden leichten Änderungen der normierten Randomsignale sein. Für die quantitative Auswertung der IST-Kurven wurde dieser modulierte Untergrund ($\leq 5\%$) abgezogen (rote Geradenabschnitte in Abb. 6.16 rechts) und die Kurve

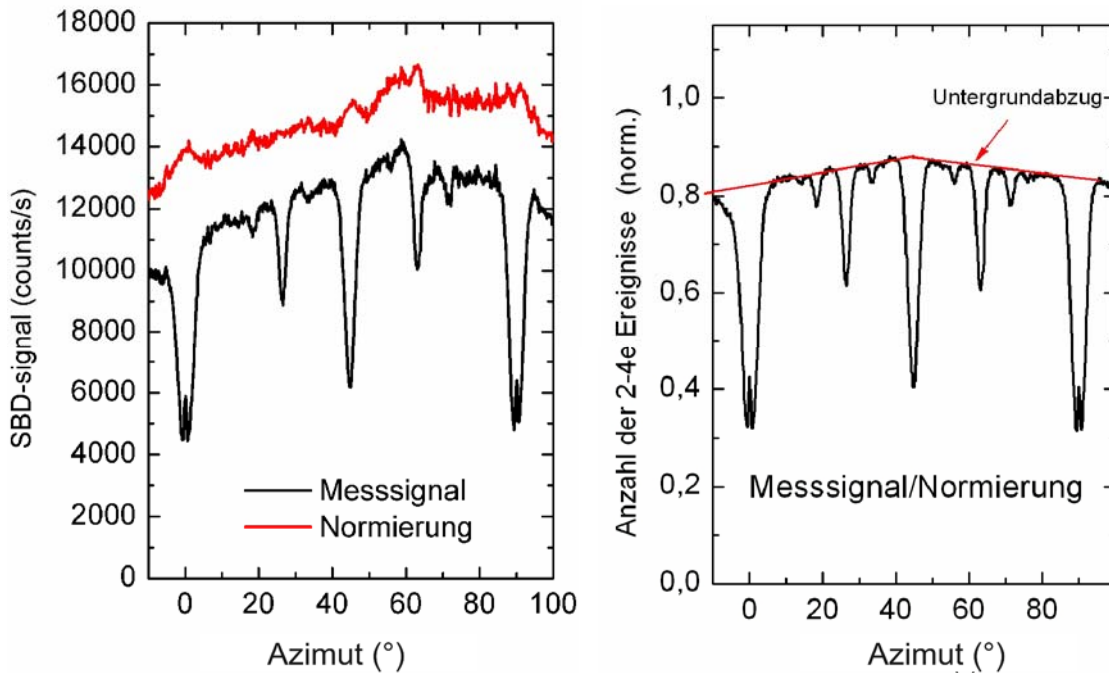


Abb. 6.16 links: Anzahl der 2-4e Emissionsereignisse (Messsignal, —) während der azimuthalen Drehung des Cu(001)-Targets (Streuung: 29 keV H^0 , $\phi_{in}=1.6^\circ$) und Gesamtanzahl aller registrierten Emissionsereignisse (2-40e) zur Normierung des Messsignals, rechts: auf die Gesamtanzahl normiertes Messsignal, für die quantitative Auswertung wurde zusätzlich ein linearer Untergrundabzug (rote Geradenabschnitte) vorgenommen. Nach dem Untergrundabzug werden die IST-Kurven auf die mittlere Anzahl bei zufälligem Ioneneinfall renormiert.

danach auf das mittlere Randomsignal renormiert.

Die Leistungsfähigkeit der „Selbstnormierung“ über die Gesamtmissionsanzahl verdeutlicht Abbildung 6.17. Hier wurde der auf das Target einfallende Ionenstrahl absichtlich modifiziert, so dass während der Messung kurzzeitige Schwankungen der Ionenintensität im Bereich von $\pm 75\%$ auftraten (siehe Abb 6.17 links).

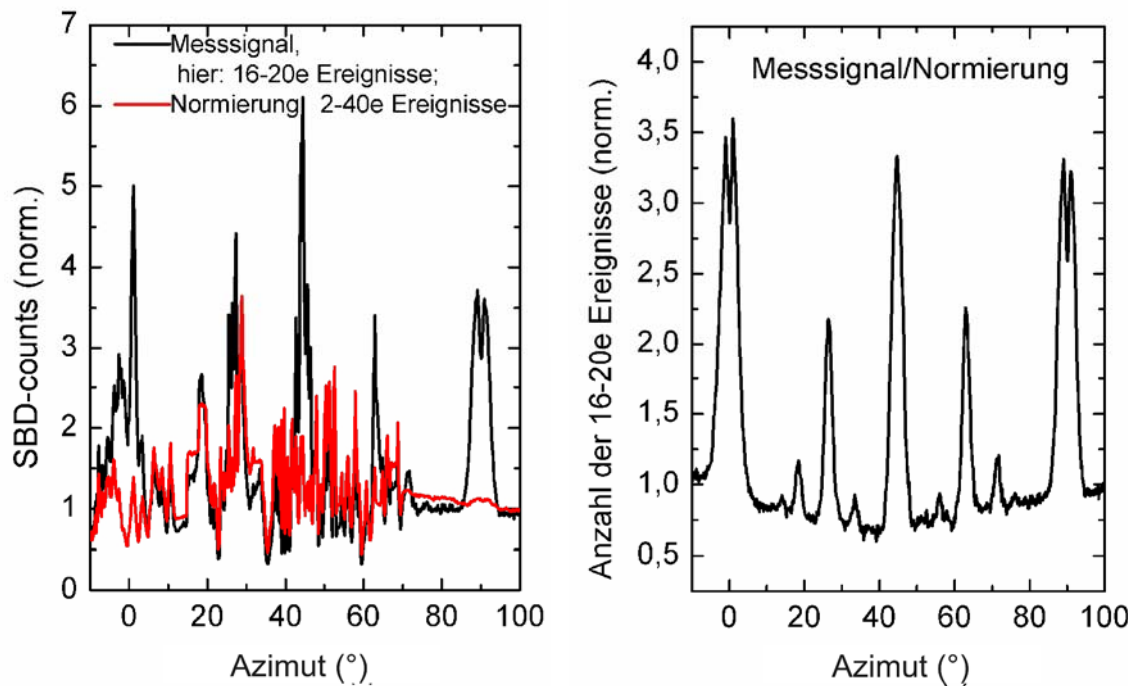


Abb. 6.17 links: Anzahl der 16-20e Emissionsereignisse (Messsignal, —) während der azimuthalen Drehung des Cu(001)-Targets (Streuung: 29 keV H^0 , $\phi_{in}=1.6^\circ$) und Gesamtanzahl aller registrierten Emissionsereignisse (2-40e, —) zur Normierung des Messsignals, zum Testen der Anzahlnormierung wurde hier der Ionenstrahl destabilisiert, so dass die einfallende Ionenintensität deutliche Schwankungen von bis zu $\pm 75\%$ aufweist, Kanalrichtungen der Cu(001)-Oberfläche können aus dem direkten Messsignal nicht entnommen werden. rechts: auf die Gesamtanzahl normiertes Messsignal, die auftretenden Intensitätsschwankungen des Ionenstrahls wurden vollständig rausnormiert.

Die Aufnahme einer Targetstromkurve unter diesen Bedingungen führt zu kaum auswertbaren Daten. Im Gegensatz dazu zeigt die normierte IST-Kurve (hier exemplarisch 16-20e Emissionsereignisse in Abb. 6.17 rechts) kaum Abweichungen zu Messungen unter stabilen Strahlbedingungen und kann somit ausgewertet werden.

6.6 Zusammenfassung

Die Ionenstrahltriangulation ist eine Messmethode zur Bestimmung der azimuthalen Winkellagen und Kanalbreiten dichtgepackter Atomreihen von langreichweitig geordneten Kristalloberflächen. Dabei werden unter flachen Einfallswinkeln (1° - 2°) leichte Atome oder Ionen (He, H) bei Primärenergien von einigen 10 keV über die Oberfläche gestreut. Fällt der Projektilstrahl bei azimuthaler Drehung der Probe parallel zu einer niederindizierten Oberflächenkanalrichtung ein, so findet die Streuung der Projektile nicht an einem planaren Oberflächenpotential, sondern an axialen Kettenpotentialen statt. Dieser Übergang von planarer zu axialer Streusymmetrie kann sowohl über die Änderungen der Winkelverteilung spekulär reflektierter Projektile als auch über die Änderung der ioneninduzierten Elektronenemission registriert werden. Die messtechnisch einfachste Variante ist die Messung des Targetstroms. Dieser entspricht bei den hier ver-

wendeten Streubedingungen in etwa dem Strom emittierter Elektronen. Nachteile dieser Messvariante sind: (1) die weitgehend unbestimmte Informationstiefe der Signale, (2) zu den Signalhöhen beitragende, quantitativ schwer zugängliche Emissionsprozesse (Elektronenkaskaden, Stufenkantenemission etc.), (3) vergleichsweise hohe Ionenstrahlsromdichten (0.1 nA/mm^2) und (4) zur Reduzierung von Signalschwankungen (Ionenintensität) sind relativ hohe Messzeiten erforderlich.

In diesem Kapitel wurde eine neue, auf der Elektronenanzahlstatistik beruhende Variante der Ionenstrahltriangulation vorgestellt. Über ein elektrostatisches Absaug- und Beschleunigungsfeld werden die vom Atomstrahl an der Probenoberfläche emittierten Elektronen auf einen Halbleiterdetektor fokussiert. Dieser Aufbau ermöglicht die Registrierung der pro Streuprozess emittierten Anzahl von Elektronen. Die Statistik von Emissionsprozessen entspricht im Fall der planaren Oberflächenstreuung in guter Näherung einer Poissonverteilung. Die relative Änderung der Anzahlverteilung bei axialer Streuung weist auf Projektilanteile hin, die unter die oberste atomare Lage gelangen, dort axial geführt werden und eine Vielzahl von Elektronen auslösen. Dementsprechend können Streuprozesse, die ausschließlich an der Oberfläche stattfinden, über die Anzahl emittierter Elektronen von solchen Streuprozessen unterschieden werden, die sich über mehrere atomare Lagen erstrecken (d.h. Eindringen) oder an Stufenkanten stattfinden. Diese über die Anzahlstatistik realisierbare Selektion an der Oberfläche reflektierter (niedrige Elektronenanzahlen: hier 2-4e Prozesse) bzw. transmittierter Projektilanteile eröffnet den theoretischen Zugang zur quantitativen Simulation von Ionenstrahltriangulationsmessungen. Diese Simulation umfasst die Berechnung von Projektiltrajektorien unter dem Einfluss geschirmter Coulombpotentiale der Oberflächenatome. Entsprechend den Überlegungen zur Emissionsstatistik wurde in der Simulation der Anteil an Projektilen registriert, der *nicht* unter die erste atomare Lage gelangt (oberflächenreflektierter Anteil). Verglichen wird die azimutale Abhängigkeit des oberflächenreflektierten Projektilanteils der Simulation mit der Änderung der Anzahl an Emissionsereignissen, die zur Emission weniger Elektronen führen (IST-Kurve). Über eine moderate Anpassung des Wechselwirkungspotentials und der parallelen bzw. senkrechten Oberflächen-Debyetemperaturen (als Maß für die mittlere Auslenkung der Kristallatome) kann eine quantitative Übereinstimmung zwischen simulierten und experimentellen IST-Kurven erzielt werden. Die azimutalen Winkellagen der IST-Signale und die von den effektiven Kanalbreiten abhängige Rangfolge der Signalhöhen sind direkt von der lateralen Anordnung der Oberflächenatome abhängig und können nicht durch die Wahl der Anpassungsparameter geändert werden. Aus dem Vergleich der simulierten mit der experimentellen IST-Kurve kann iterativ ein Strukturmodell erstellt oder bestehende Strukturmodelle überprüft werden.

Zur Bestimmung der Oberflächensensitivität der neuen Variante der Ionenstrahltriangulation

wurden IST-Kurven an einer hexagonal rekonstruierten Monolage Mn/Cu(001) aufgenommen. Dabei weisen Streuprozesse, die viele Elektronen auslösen ($>12e$), zunehmend Strukturinformationen tieferer atomarer Lagen auf. Streuprozesse, die zur Emission weniger Elektronen führen ($\leq 4e$), zeigen dagegen eine auf die oberste atomare Lage beschränkte Informationstiefe. Da Stufenkantenwechselwirkungen zur erhöhten Emission von Elektronen führen, haben rauigkeitsbedingte Effekte keinen direkten Einfluss auf die IST-Kurven ($2-4e$), was auch Strukturanalysen rauer Oberflächen mit einer vergleichbar hohen Oberflächensensitivität ermöglicht. Über IST können statistisch auftretende Oberflächenstrukturen mit Domänengrößen im Bereich von einigen zehn Å untersucht werden.

Die auf dem Nachweis von Elektronen (Emissionsstatistik) basierende Variante der Ionenstrahltriangulation benötigt wegen der Zählung einzelner Emissionsprozesse Teilchenströme von weniger als einem fA, ein erheblicher Vorteil zur Untersuchung sensibler metastabiler Oberflächenstrukturen.

Letztlich sind die Daten durch die Normierung der Messsignale auf die Gesamtanzahl an Emissionsereignissen weitgehend unabhängig von Intensitätsschwankungen des Ionenstrahls.

7 Wachstum und Struktur von Mn auf Cu(001)

In diesem Kapitel werden das Wachstum, die Struktur und die chemische Zusammensetzung von Mn auf Cu(001) auf der Grundlage der in den vorigen Kapiteln 5 und 6 vorgestellten Messmethoden untersucht.

Das epitaktische System Mn/Cu(001) weist eine temperatur- und bedeckungsabhängige Vielfalt geordneter Oberflächenstrukturen auf. Zum einen kann an diesen komplexen Oberflächenrekonstruktionen das strukturanalytische Potential der in Kapitel 6 vorgestellten Variante der Ionenstrahltriangulation aufgezeigt werden, zum anderen ermöglicht der Vergleich simulierter und experimenteller IST-Kurven Rückschlüsse auf die Evidenz bestehender und bisweilen auch konkurrierender Strukturvorschläge anderer Analyseverfahren.

7.1 Das System Mn/Cu(001)

Die beim Wachstum von Mn auf Cu(001) auftretenden Film- und Legierungsphasen in Abhängigkeit von Wachstumstemperatur und Bedeckung zeigt das in Abb. 7.1 dargestellte Mn/Cu-Phasendiagramm von Flores *et al.* [FH92].

Bei einer Wachstumstemperatur oberhalb von ca. $T_{\text{growth}}=320$ K bildet sich im Bedeckungsbereich von 0.5 ML bis ca. 1.3 ML die thermodynamisch stabile Cu(001)c(2x2)Mn-Legierungsphase aus. Die im Vergleich zu anderen c(2x2)-Oberflächenlegierungen (z.B. Au/Cu(001) [WA87] bzw. Pd/Cu(001) [WU88]) starke Auswärtsrelaxation von $\Delta z=0.3\pm 0.05$ Å (z.B. [WG93], [TT96], [DF00]) weist auf ein hohes lokales Spinmoment der Mn-Atome hin. Bestätigt wurde diese Interpretation durch Röntgenabsorptions- und Photoemissionsuntersuchungen (z.B.: [HP95], [SH99]). In dieser Arbeit durchgeführte MOKE- und Elektreneinfang (EC)-Messungen zeigen auch nach abgesenkter Proben temperatur auf $T_{\text{meas}}=140$ K keine nachweisbare langreichweitige, ferromagnetische Kopplung dieser induzierten magnetischen Mn-Momente.

Fortschreitende Bedeckung führt zwischen einer und zwei Monolagen ($320\text{ K} < T_{\text{growth}} < 470\text{ K}$) zu einer Änderung des beobachtbaren Beugungsbildes. Die auftretenden (4x2)-Überstrukturreflexe wurden von [FH92] auf der Basis von I/V-LEED-Analysen einer p2gg(4x2) Legierungsphase zugeordnet. Allerdings existieren für diese Legierungsphase zwei weitere konkurrierende Strukturvorschläge ([KK95], [PP05]). Bei Wachstumstemperaturen unterhalb von 250 K bleibt der für die Legierungsbildung notwendige substitutionelle Einbau von Mn in die Cu-Oberfläche unterdrückt. Die hier im Bedeckungsbereich von einer Monolage auftretenden LEED-Überstrukturreflexe wurden einer quasihexagonalen c(8x2)-Mn-Decklage zugeordnet [FH92]. Auf der Grundlage quantitativer I/V-LEED Analysen erfolgte von [GP93] eine Konkretisierung dieses c(8x2)-Strukturvorschlages.

Bei Bedeckungen im Bereich von zwei Monolagen werden in diesem Tieftemperaturregime $c(12 \times 8)$ -Überstrukturreflexe beobachtet. Ein aus I/V-LEED abgeleitetes Strukturmodell für die $c(12 \times 8)$ -Phase konnte wegen der Größe der Einheitszelle (ca. 192 Atome für zwei rekonstruierte Lagen) und der erhöhten Filmrauigkeit nicht realisiert werden. Auf der Basis früherer IST-Targetstrommessungen an der Cu(001) $c(12 \times 8)$ Mn-Phase wurde ein komplexes

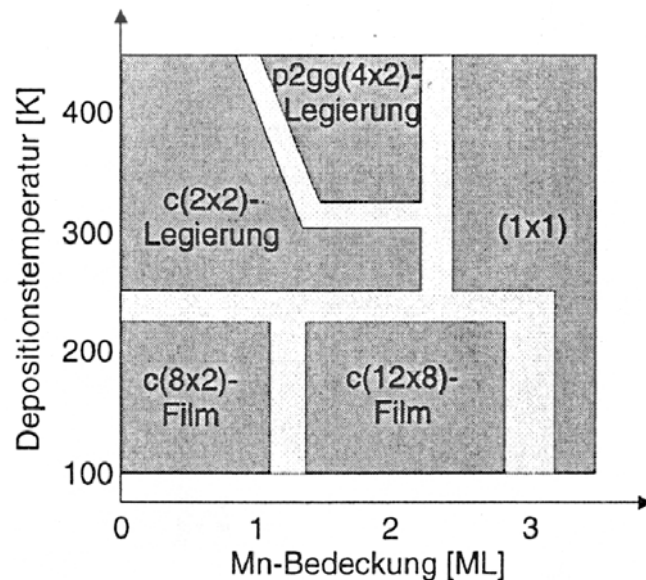


Abb. 7.1: Schematisches Diagramm auftretender Filmstrukturen des Systems Mn/Cu(001) in Abhängigkeit von Wachstumstemperatur und Bedeckung. aus [FH92]

lagenabhängiges Strukturmodell vorgeschlagen ([PB03] und [BP03]). Die den Targetstrommessungen zu entnehmenden Richtungen dicht gepackter Atomreihen wurden dabei zwei unterschiedlich rekonstruierten $c(12 \times 8)$ Mn-Lagen zugeordnet. Allerdings zeigen neuere quantitative IST-Untersuchungen mittels Emissionsstatistik, dass beide Mn-Lagen die gleiche $c(12 \times 8)$ -Rekonstruktion aufweisen. Dementsprechend sind die den Targetstromkurven zu entnehmenden Winkellagen dicht gepackter Atomreihen nur einer der beiden Mn-Lagen zuzuordnen, was eine Revision des $c(12 \times 8)$ -Strukturmodells aus [PB03] notwendig macht. Mn-Bedeckungen oberhalb von ca. 2.7 ML weisen in allen Temperaturbereichen die für das Cu(001)-Substrat typischen $p(1 \times 1)$ -Beugungsreflexe auf.

Nach der Charakterisierung des temperaturabhängigen Mn auf Cu(001) Wachstums stehen im Mittelpunkt der folgenden Abschnitte quantitative IST-Untersuchungen an der $c(8 \times 2)$ bzw. $c(12 \times 8)$ -Mn-Tieftemperatur- und der $p2gg(4 \times 2)$ -Hochtemperaturphase. Untersucht wurde ebenfalls der thermisch induzierte $c(8 \times 2)$ -nach $c(2 \times 2)$ -Phasenübergang.

7.2 Das temperaturabhängige Wachstum von Mn auf Cu(001)

Abbildung 7.2 zeigt die Intensität spekulär reflektierter 25 keV He^0 -Projekte während des Wachstums von Mn auf Cu(001) bei verschiedenen Wachstumstemperaturen. Da ausgehend

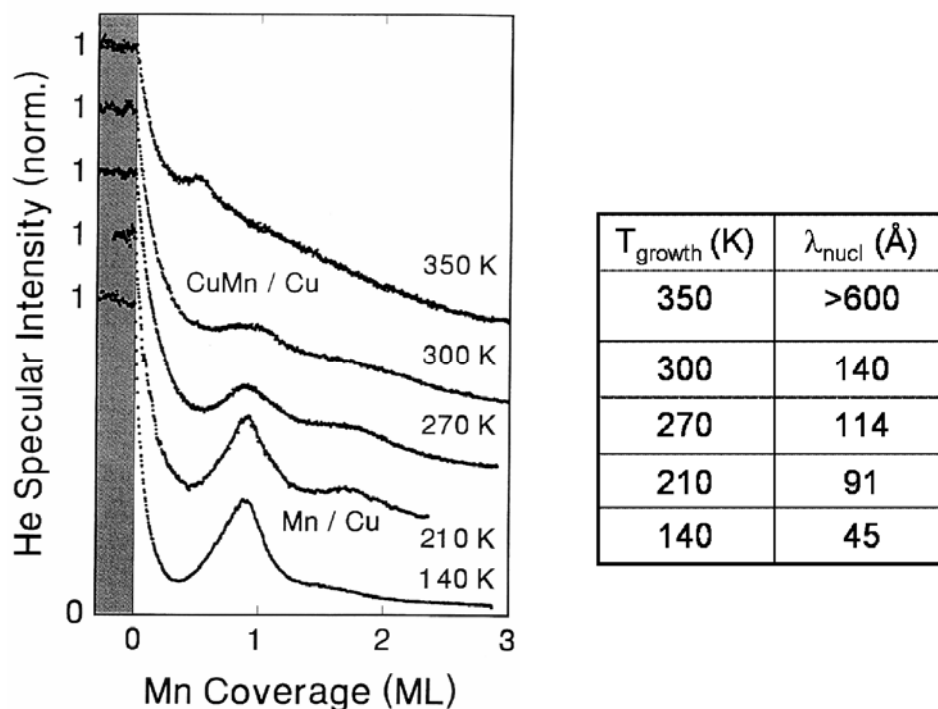


Abb. 7.2 links: spekulär reflektierte He^0 -Intensität (25 keV, $\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$) während des Wachstums von Mn auf Cu(001) bei verschiedenen Wachstumstemperaturen (T_{growth}), die Aufdampftrate beträgt $p=0.038\pm0.004$ ML/s rechts: aus dem Vergleich der Intensitäten im ersten Minimum der Wachstumsoszillationen mit Monte-Carlo-Simulationen gewonnene mittlere Nukleationsabstände für die Ausbildung der ersten Monolage

von dem Strukturmodell von Gauthier *et al.* [GP93] bei einer nominellen Bedeckung von 0.9 ML die $c(8\times 2)\text{Mn}$ -Lage geschlossen vorliegt, wurde das Auftreten des ersten Intensitätsmaximums auf diesen Wert festgelegt. Unterhalb von 300 K werden stark gedämpfte Intensitätsoszillationen beobachtet. Die hohe Intensität des ersten Maximums ($T_{\text{growth}}=140$ K) weist auf die Ausbildung eines glatten Monolagenfilms hin, wohingegen die zweite Mn-Lage von einem deutlich rauerem Lagenwachstum begleitet wird. Im Bedeckungsbereich oberhalb von zwei Monolagen sind über die Spekularintensität keine Oszillationen mehr erkennbar, allerdings kann über die Elektronenemission die stark gedämpfte Oszillation einer dritten Mn-Lage verifiziert werden (vgl. Abb. 5.14 rechts). Die Beobachtung eines zunehmend rauerem Lagenwachstums steht in qualitativer Übereinstimmung mit vorherigen [FH92] und hier durchgeführten LEED-Studien, die bei einer Bedeckung von 0.9 ML scharfe Überstrukturereflexe aufweisen. Die bei fortschreitender Bedeckung auftretenden $c(12\times 8)$ -Reflexe zeigen einen deutlich stärkeren diffusen inelastischen Untergrund. Aus protoneninduzierten Augermessungen (siehe Kap. 7.6) folgt

für alle Bedeckungsbereiche des Tieftemperaturregimes ($T_{\text{growth}} < 265$ K) durchmischungsfreies Wachstum. Für Wachstumstemperaturen oberhalb von 265 K setzen hingegen schon in frühen Wachstumsstadien massive Cu-Mn-Austauschprozesse ein, die bei Bedeckungen bis zu einer Monolage zur Ausbildung einer langreichweitig geordneten $c(2 \times 2)$ -Oberflächenlegierung führen. Das Einsetzen von Mn-Cu-Austauschprozessen und die damit verbundene Cu-Diffusion an der Oberfläche haben deutliche Auswirkungen auf die He-Intensitätsoszillationen. Charakteristisch für die auftretenden Oszillationen in diesem Temperaturbereich ist die Zunahme an Intensität im Submonolagenregime, was zur verringerten Ausbildung des ersten Maximums ($T_{\text{growth}} = 300$ K) bei einer nominellen Bedeckung von 1.0 ML führt. Insgesamt zeigt sich trotz kaum ausgeprägter Intensitätsoszillationen im Raumtemperaturregime eine zur geschlossenen Tieftemperatur-Monolage vergleichbare Oberflächenrauigkeit.

Das nachweisbare Intensitätsmaximum bei einer nominellen Mn-Bedeckung von 1.0 ML ($T_{\text{growth}} = 300$ K) weist auf eine, sich über zwei atomare Lagen erstreckende, $c(2 \times 2)$ -CuMn Oberflächenlegierung hin, in Übereinstimmung mit den aus STM-Studien geschlussfolgerten Wachstumsszenario [FJ97].:

Nach der Adsorption an der Oberfläche setzt eine schnelle Diffusion der Mn-Atome auf der Cu(001)-Oberfläche ein (die energetische Barriere für Hüpfdiffusion liegt bei ca. 0.3 eV) einhergehend mit der Nukleation von Mn-Inseln. Auf einer langsameren Zeitskala erfolgt dann durch *Interlagen*-Austauschprozesse der Einbau von Mn-Atomen in tiefer liegende Cu-Terrassen. Anschließende Diffusion von Cu-Adatomen auf den oberen Terrassen, Stufenkantenfluktuationen und Diffusion von Mn-Atomen in unteren Terrassen, hauptsächlich durch Fehlstellendiffusion initiiert, führen zu einer homogenen Mn-Verteilung über zwei Oberflächenlagen.

Wie Abb. 7.2 zu entnehmen ist, hat die Erhöhung der Wachstumstemperatur auf 350 K eine Verschiebung des ersten Oszillationsmaximums auf ca. 0.5 ML zur Folge. Dementsprechend kann sich in diesem Bedeckungsbereich die $c(2 \times 2)$ -CuMn-Legierung ausschließlich auf die oberste atomare Lage erstrecken. Ausgehend von den bei 300 K diskutierten dominanten Wachstumsprozessen, lässt dies den Schluss zu, dass bei erhöhten Wachstumstemperaturen, die an der Oberfläche diffundierenden Mn-Atome eher Cu-Substratstufen erreichen und eingebaut werden als selbst zur Nukleation von Inseln beizutragen. Ein solches Stufenkantenwachstum, vernachlässigbar für niedrigere Wachstumstemperaturen, steht in Übereinstimmung mit STM Beobachtungen [KK95]. So dissoziieren die bei Raumtemperaturwachstum nukleierten Inseln ($\theta = 0.2$ ML) durch Erhöhung der Proben temperatur auf 350 K. Die Inselatome lagern sich nach der Dissoziation an Terrassenkanten des Substrates an. Dieses Stufenkantenwachstum erklärt den langsamen, nahezu monotonen Abfall der Spekularintensität bei Wachstumstemperaturen

oberhalb von 350 K. Die zur Ausbildung einer geordneten $c(2 \times 2)$ -Legierung erforderliche Durchmischung des Filmes könnte hier durch *Intralagen*-Austauschprozesse wie Stufenkantenfluktuationen oder Fehlstellendiffusion realisiert sein. Die sich im Gegensatz zum Raumtemperaturwachstum im Bedeckungsbereich von 1-2 ML oberhalb von $T_{\text{growth}}=350$ K herausbildende metastabile $p2gg(4 \times 2)$ -Überstruktur könnte im Zusammenhang mit den differierenden Wachstumsmechanismen beider Temperaturregime stehen. Der mit zunehmender Wachstumstemperatur monotone Anstieg der He-Intensität bei Bedeckungen im Bereich des ersten *Minimums* zeigt, dass die Sättigungsinseldichte entsprechend der Nukleationstheorie [VS84] abnimmt. Aus dem Vergleich der gemessenen Intensitäten mit Monte-Carlo-Simulationen streifend gestreuter He^0 -Projekte [PI00] kann auf den von der Wachstumstemperatur abhängigen mittleren Nukleationsabstand geschlossen werden (Abb. 7.2 rechts). Bei Wachstumstemperaturen über 350 K liegt der Nukleationsabstand im Bereich der Substratterassenbreite (~ 1000 Å). Das erklärt den wesentlichen Einfluss der Terrassenkanten auf die Ausbildung der Legierungsphasen ($c(2 \times 2)$ bzw. $p2gg(4 \times 2)$) in diesem Temperaturregime.

7.3 Die Cu(001)c(8x2)Mn-Struktur

Unterhalb von $T_{\text{growth}}=270$ K sind substitutionelle Cu-Mn-Austauschprozesse unterdrückt. Die sich bei einer Wachstumstemperatur von 200 K herausbildende geschlossene Mn-Lage wurde

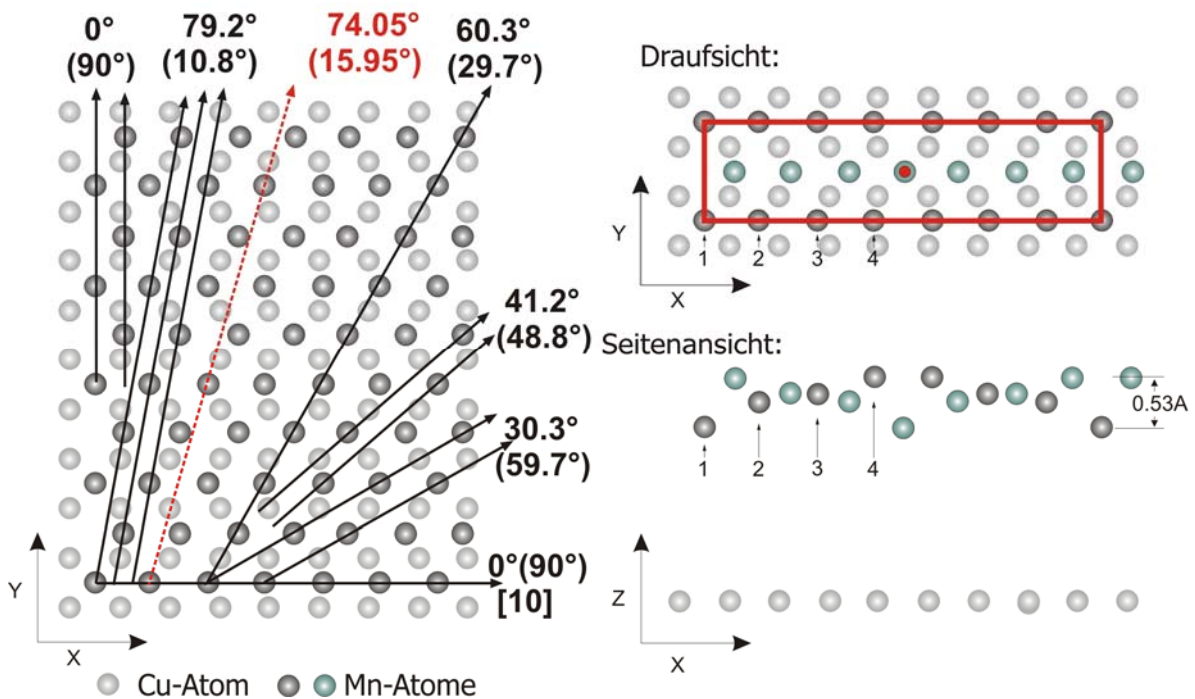


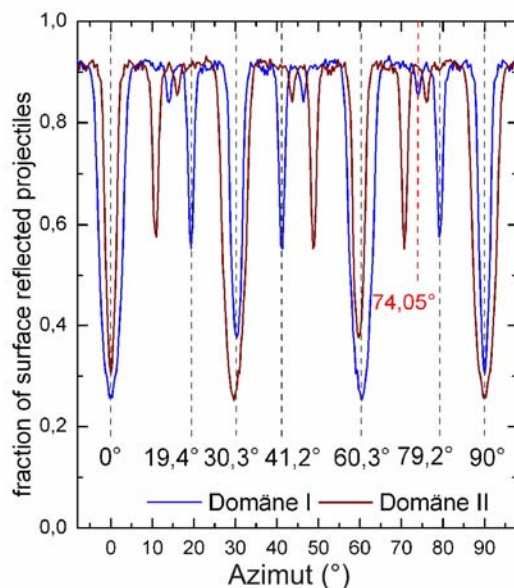
Abb. 7.3 links: Aus I/V-LEED-Analysen entwickeltes Strukturmodell für die Cu(001)c(8x2)Mn-Lage ($T_{\text{growth}}=200$ K) aus [GP93], zusätzlich wurden in die laterale quasihexagonale Atomanordnung die breitesten Haupt- und Nebenkanäle und deren Winkellagen eingezeichnet. In Diskrepanz zur experimentellen IST-Kurve steht insbesondere das Auftreten des im gezeigten Modell nicht vorhandenen und rot gekennzeichneten Kanals bei $\theta=74.05^\circ(15.95^\circ)$. (Die zu diesem Strukturvorschlag simulierte IST-Kurve ist in Abb. 7.5 dargestellt); rechts: Die c(8x2)-Einheitszelle Aufsicht (die genauen Positionen der Atome 1 bis 4 sind in Abb. 7.4 rechts zusammengefasst) und die aus der I/V-LEED-Analyse geschlussfolgerte sinusartige vertikale Korrugation der Mn-Atome (Seitenansicht).

von Gauthier *et al.* [GP93] mittels quantitativer I/V-LEED-Analysen untersucht. Das auf der Basis dieser Untersuchungen aufgestellte Strukturmodell zeigt Abb. 7.3. Die Basisstruktur bildet eine c(8x2)-Einheitszelle mit einer quasihexagonalen Anordnung der Mn-Atome. Die Struktur ist bezüglich der $[10]_{\text{sc}}$ bzw. $[01]_{\text{sc}}$ -Cu(001)-Oberflächenrichtungen spiegelsymmetrisch. Dementsprechend existieren zwei Domänen, deren dicht gepackte Reihen sich entlang der $[10]_{\text{sc}}$ -Richtung (1. Domäne) bzw. entlang der $[01]_{\text{sc}}$ -Richtung (2. Domäne) orientieren. (Im Folgenden beziehen sich die in Klammern stehenden Winkel oder Richtungsangaben auf die jeweils andere Domäne.) Der mittlere interatomare Abstand innerhalb dieser Ketten beträgt 2.92 Å. Aus Gründen der Kommensurabilität mit dem quadratischen Cu(001)-Untergitter ist eine leichte Verzerrung der hexagonalen Mn-Positionen erforderlich, dementsprechend liegen weitere dicht gepackte Reihen der quasihexagonalen Anordnung bei $\theta=60.3^\circ(29.7^\circ)$, mit einem mittleren interatomaren Abstand von 2.94 Å. Die im Vergleich zur γ -Mn-Phase um ca. 8 % erhöh-

ten Mn-Atomradien weisen analog zur c(2x2)-Legierungsphase auf ein großes magnetisches Spinnmoment der Adsorbatatome hin (Magnetovolumeneffekt). Die Winkellagen aller weiteren Kanäle einer Domäne können über:

$$\tan(\theta) = \frac{s \cdot n}{r / 7 \cdot m} \quad \text{mit } n, m \in \mathbb{Z} \quad (7.1)$$

berechnet werden. Für die hier gültige c(8x2)-Einheitszelle gilt $s=2$ und $r=8$. Die Richtungen der anderen Domäne ergeben sich entsprechend aus $90^\circ - \theta$. Abb. 7.3 links zeigt eine der beiden Domänen inklusive der prominentesten Kanäle dieses Modells. Für eine genauere LEED-Anpassung wurden in [GP93] sowohl die lateralen als auch die vertikalen Atompositionen innerhalb der quasihexagonalen c(8x2) Einheitszelle modifiziert. In-plane wurden entlang der



Nr.	x (Å)	y (Å)	z (Å)
1	0.0	0.0	0.0
2	2.9	0.0	0.3
3	5.9	0.0	0.4
4	8.7	0.0	0.5

Abb. 7.4: Über die Trajektorien-simulation berechneter Anteil Oberflächen-reflektierter Projektile in Abhängigkeit vom azimutalen Einfallswinkel für die zwei zu berücksichtigenden Domänen des in Abb. 7.3 dargestellten c(8x2)-Strukturvorschlages. Die Winkellagen der in Abb. 7.3 links eingezeichneten Kanäle sind über den Kurvenverlauf von Domäne 1 (blaue Kurve) nachvollziehbar. Die simulierte IST-Kurve (Abb. 7.5) setzt sich aus der Überlagerung beider Domänenbeiträge zusammen.

$[10]_{sc}$ (bzw. $[01]_{sc}$)-Richtung periodische longitudinale Verrückungen der Atome vorgenommen, so dass der interatomare Abstand entlang dieser Richtungen im Bereich zwischen 2.88 Å und 3.05 Å variiert. Vertikal ergibt eine wellenförmige Korrugation dieser Mn-Atomketten die beste Übereinstimmung mit den LEED-Untersuchungen, dabei stehen benachbarte $[10]_{sc}$ -Ketten in Antiphase (vgl. Abb. 7.3 rechts). Der maximale vertikale Abstand sinusartig korrigierter Mn-Atome zueinander liegt bei 0.53 Å, was auf eine starke Verspannung der Mn-Lage hindeutet. Die Positionen der in Abb. 7.3 rechts gekennzeichneten Atome fasst die Tabelle in Abb. 7.4

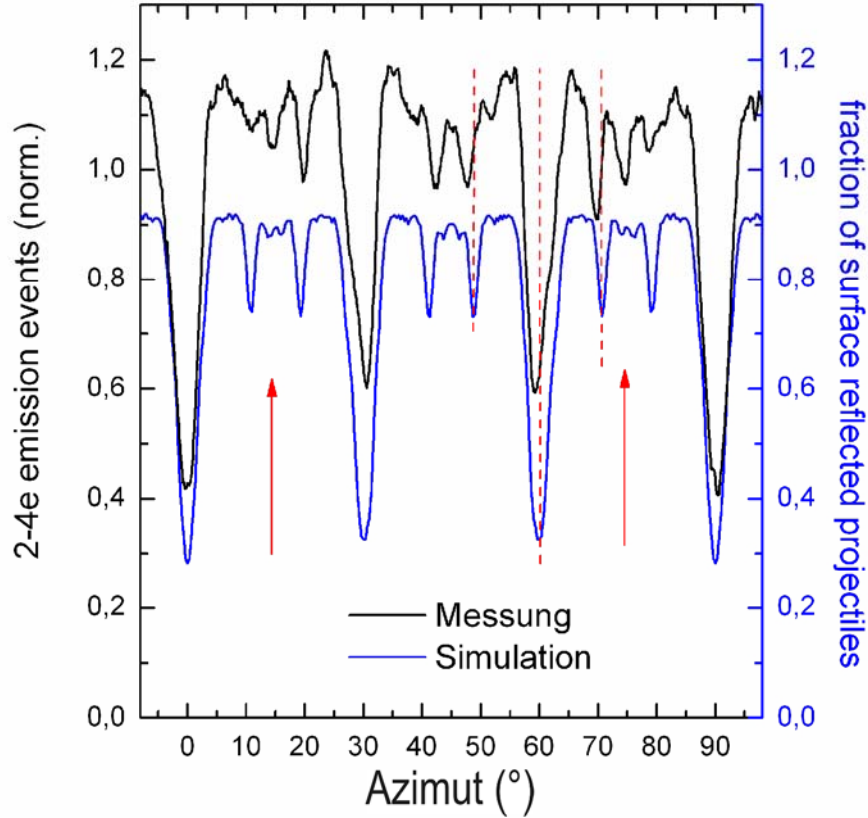


Abb. 7.5: schwarze Kurve: Anzahl von 2-4e Emissionsereignissen in Abhängigkeit vom azimutalen Einfallswinkel während der streifenden Streuung ($\phi_{in}=1.6^\circ$) von H^0 -Projektilen auf 1.0 ML Mn/Cu(001) ($T_{growth}=200$ K, $p=0.007$ ML/s). Die Kurve wurde auf die mittlere Emissionsanzahl bei zufälligem azimutalen Einfall normiert und aus Gründen der Anschaulichkeit nach oben versetzt.; blaue Kurve: durch Trajektorien-simulation berechnete Anzahl oberflächenreflektierter H-Projektilen in Abhängigkeit vom azimutalen Einfallswinkel für den in Abb. 7.3 gezeigten $c(8 \times 2)$ -Strukturvorschlag von [GP93]. Für die Simulation wurde ein reduziertes Molierpotential ($a=0.18$ a.u.) und Debyetemperaturen von $\Theta_{D\perp}=172$ K, $\Theta_{D\parallel}=202$ K bei einer Targettemperatur von $T=200$ K verwendet. Aus dem Vergleich beider Kurven folgen systematische Verschiebungen der Winkellagen einiger Kanäle (-----) sowie Diskrepanzen im Auftreten und in der Rangfolge der Kanäle (\rightarrow).

zusammen. Für die Simulation der IST-Kurve dieses $c(8 \times 2)$ -Strukturmodells wurden die angepassten Parameter der Cu(001)-Oberfläche (reduziertes Molier-Potential, $\Theta_{D\perp}=172$ K, $\Theta_{D\parallel}=202$ K) übernommen. Die vertikale Korrugation der Oberflächenatome erhöht, in Analogie zu einer herabgesetzten senkrechten Debyetemperatur, die Eindringwahrscheinlichkeit der Ionen in die Oberfläche bei zufälliger azimutaler Einfallsrichtung, ohne die Winkellage und Rangfolge der auftretenden Peaks zu beeinflussen. Quantitative Aussagen über die vertikalen Positionen der Oberflächenatome sind demzufolge nur eingeschränkt möglich. Für eine zweidomänige Struktur liegt die mittlere Domänengröße im Bereich des doppelten mittleren Nukleationsabstandes λ_{nucl} (siehe Tabelle in Abb. 7.2). Bei der hier verwendeten Wachstumstemperatur von $T_{growth}=200$ K liegt die mittlere Domänengröße (~ 180 Å) weit über der mittleren Wechselwirkungslänge der Projektilen (~ 50 Å), d. h., die Projektilen wechselwirken jeweils nur mit einer

der beiden $c(8 \times 2)$ -Domänen. Dementsprechend werden die Anteile an der Oberfläche reflektierter Projektile für die einzelnen Domänen getrennt berechnet und anschließend über Mittelwertbildung überlagert. Abb. 7.4 links zeigt die oberflächenreflektierten Projektilanteile als Funktion des Azimutwinkels separat für beide $c(8 \times 2)$ -Domänen. Die über Gl. 7.1 berechenbaren und in den Strukturvorschlag von Gauthier *et al.* (Abb. 7.3) eingetragenen Winkellagen dicht gepackter Atomreihen (für Domäne I), sind erwartungsgemäß in der IST-Simulation dieses

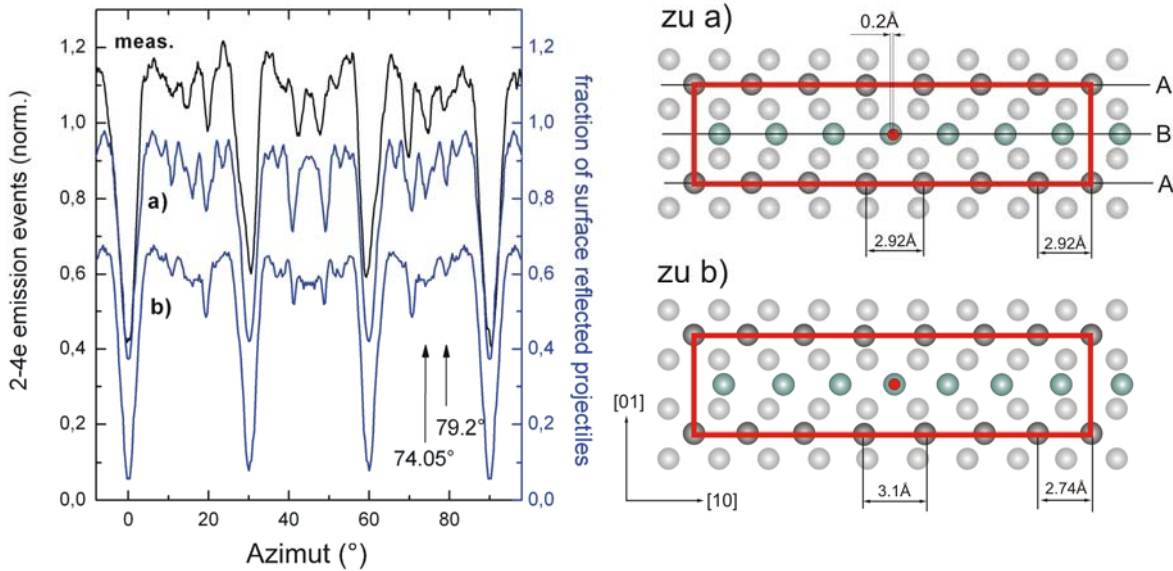


Abb. 7.6: Vergleich zwischen der experimentellen IST-Kurve (schwarz) und IST-Simulationen (blau) (siehe weiteres Abb. 7.5) für modifizierte $c(8 \times 2)$ -Strukturmodelle. In Modell (a) wurde im Vergleich zur Ausgangsstruktur (Abb. 7.3) die Atomreihe B um 0,2 Å gegen Reihe A entlang der $[10]_{sc}$ -Richtung versetzt, die interatomaren Abstände entlang dieser Richtung wurden konstant bei 2,92 Å gehalten. In Modell (b) wurde keine Versetzung der Atomreihen vorgenommen, stattdessen variiert der interatomare Abstand der Mn-Atome entlang der $[10]_{sc}$ -Richtung zwischen 3,1 Å und 2,74 Å. Beide Modifizierungen führen zum Schließen des Kanals bei $\theta = 79,2^\circ$ ($10,8^\circ$). Eine insgesamt bessere Anpassung der Signalintensitäten liefert Modell (a)

Strukturmodells wiederzufinden. Die in der Simulation mitberücksichtigten periodischen longitudinalen Modifikationen der Atompositionen des Strukturmodells (Tabelle in Abb. 7.4 und Abb. 7.3 rechts) haben demnach keinen Einfluss auf die *Winkellagen* dicht gepackter Atomreihen. Allerdings führen geringfügige Änderungen der lateralen Atompositionen innerhalb der Einheitszelle zu einem selektiven Öffnen bzw. Schließen von Kanälen. Die Signale bei 0° , 30° , 60° und 90° setzen sich aus den überlagerten Beiträgen beider Domänen zusammen, alle anderen Peaks entsprechen Kanalrichtungen einzelner Domänen. Abb. 7.5 vergleicht die aus der Überlagerung der $c(8 \times 2)$ -Domänenbeiträge gewonnene IST-Simulation (blau) mit der experimentellen IST-Kurve (2-4e Ereignisse, schwarz) an einer atomaren Mn-Lage auf Cu(001) ($T_{\text{growth}} = 200$ K). Wesentliche Merkmale der gemessenen IST-Kurve sind durch das Strukturmodell reproduzierbar.

Die aus der Superposition der einzelnen Domänen folgende Gesamtrefektivität und Signal-

form entlang dicht gepackter Atomreihen bei $\theta=0^\circ$, 30° , 60° und 90° werden vom simulierten Kurvenverlauf wiedergegeben. Die der IST-Messung zu entnehmenden azimuthalen Winkellagen dicht gepackter Atomreihen stimmen in erster Näherung mit denen des Strukturvorschlages

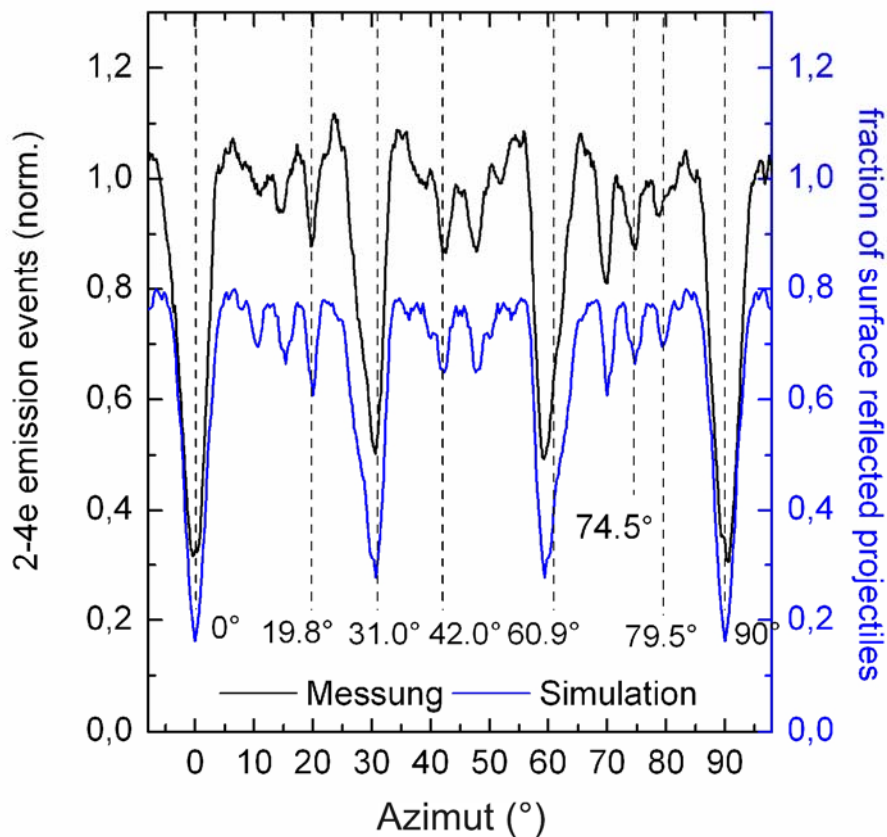


Abb. 7.7: Vergleich zwischen der experimentellen IST-Kurve (schwarz) und der IST-Simulation (blau) (siehe weiteres Abb. 7.5) für das in Abb. 7.8) dargestellte $c(10 \times 2)$ -Strukturmodell. Sowohl die Winkellagen auftretender Kanäle als auch die Rangfolge der Signalhöhen stimmen mit der IST-Messung überein.

überein. Allerdings zeigt sich bei detaillierter Analyse der gemessenen und simulierten Winkellagen eine systematische Verschiebung (rot markiert in Abb. 7.5) der experimentellen Peakpositionen um bis zu $\Delta\theta=1.1^\circ$ (z.B.: theo.: $\theta=41.2^\circ$, exp.: $\theta=42.3 \pm 0.6^\circ$) in Richtung der $\theta=45^\circ$ Spiegelsymmetrieachse. Die aus den relativ breiten Kanälen bei $\theta=79.2^\circ$ (10.8°) (eingezeichnet in Abb. 7.3 links) folgenden Peakhöhen sind in der experimentellen IST-Kurve deutlich reduziert, was auf ein effektives Schließen dieses Kanals in der realen Mn-Struktur hindeutet. Stattdessen weist der im Strukturmodell weitgehend geschlossene Kanal bei ca. $\theta=74.05^\circ$ (15.95°) in der Messung ein erheblich stärkeres Signal auf (rote Pfeile in Abb. 7.5). Unterschiede in den auftretenden Signalhöhen erfordern Änderungen der lateralen Positionen der Mn-Atome innerhalb der vorgegebenen Einheitszelle. Systematisch verschobene Winkellagen ziehen dagegen eine geringfügige Modifikation der Einheitszellengröße und/oder der atomaren Kettendichte nach sich. Auf der Basis des LEED-Strukturvorschlages wurden unterschiedliche Ansätze für eine Modifikation der in-plane Atompositionen mit dem Ziel einer besseren Anpassung der Simulation an

die Messkurve verfolgt. Dabei wurden zunächst, wie in [GP93] vorgeschlagen, transversale (Mäanderversetzungen) und longitudinale Versetzungen (Stauchung und Streckung der interatomaren Abstände innerhalb der Ketten) der Mn-Atome entlang der [10] ([01])-Atomreihen vorgenommen. Da im jetzigen Stadium der IST-Analysen noch keine selbstständige strukturelle Anpassungsprozedur vorliegt, wurden stichprobenartig die Auswirkungen unterschiedlicher Atomversetzungen anhand der Simulationskurven überprüft.

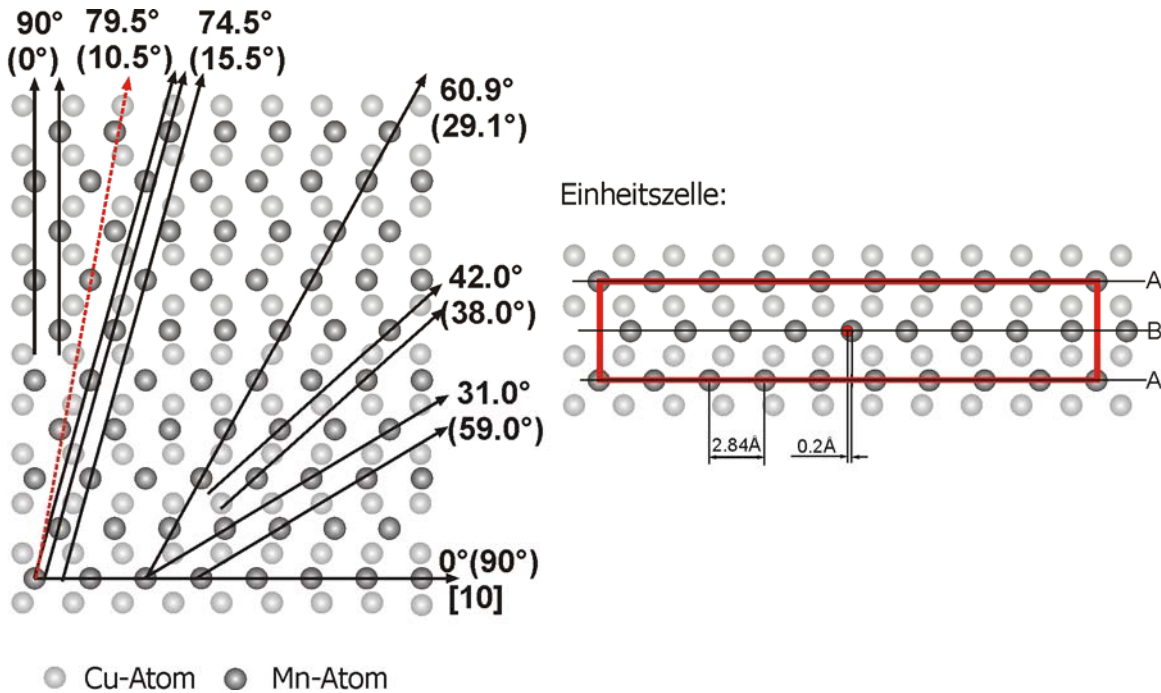


Abb. 7.8: Aus der Anpassung an die IST-Messung folgendes $c(10 \times 2)$ -Strukturmodell. Im Vergleich zu dem aus der Literatur bekannten Strukturmodell ([GP93], siehe Abb. 7.3) führt die Anpassung an die IST-Kurve zu einem entlang der $[10]_{sc}$ - (bzw. $[01]_{sc}$)-äquidistanten interatomaren Abstand von $a = 2.84 \text{ \AA}$, was die Vergrößerung der Einheitszelle von $c(8 \times 2)$ nach $c(10 \times 2)$ nach sich zieht. Für das Schließen des Kanals bei $\theta = 79.5^\circ (10.5^\circ)$ und das Öffnen des Kanals bei $74.5^\circ (15.5^\circ)$ ist eine Versetzung benachbarter Atomreihen A und B um 0.2 \AA erforderlich (siehe $c(10 \times 2)$ -Einheitszelle rechts). Die aus dem Modell resultierende Simulationskurve steht in guter Übereinstimmung mit der IST-Messung (Abb. 7.7).

Allerdings kann schon anhand der geometrisch bestimmbaren Kanalbreiten auf den groben Verlauf der Simulationskurven geschlossen werden, was eine zielgerichtete Anpassung der lateralen Atompositionen ermöglicht. Für das Schließen des Kanals bei $\theta = 79.2^\circ (10.8^\circ)$ erweisen sich dementsprechend sinusartige transversale Auslenkungen (Elongation: u_p) der dicht gepackten $[10]_{sc}$ ($[01]_{sc}$)-Atomreihen als ungeeignet, da diese Versetzungen in der Projektion nur mit $u_p \cdot \cos(79.2^\circ)$ zum Schließen des Kanals beitragen. Für eine bessere Anpassung ist eine Reduzierung der effektiven Kanalbreite des Kanals bei $\theta = 79.2^\circ (10.8^\circ)$ um ca. 0.2 \AA erforderlich, verbunden mit einer unrealistischen transversalen Auslenkung der dicht gepackten $[10]_{sc}$ -Mn-Atomketten von $u_p = 1.1 \text{ \AA}$. Allerdings führen weit geringere transversale Elongationen von $u_p \sim 0.05 \text{ \AA}$ schon zu einer deutlich schlechteren Anpassung im Bereich des restlichen Kurvenverlaufes. Eine Verstärkung der im LEED-Strukturmodell vorgeschlagenen longitudinale Ver-

setzungen der Mn-Atome (longitudinale Elongation: u_l) entlang der dicht gepackten $[10]_{sc}$ -Atomketten sind dagegen viel versprechender, da diese Versetzungen mit $u_l \cdot \sin(79.2^\circ)$ zum Schließen des Kanals bei $\theta=79.2^\circ$ (10.8°) beitragen. Allerdings zeigen sich auch hier zunehmend Abweichungen im Verlauf der restlichen Simulationskurve. Exemplarisch zeigt die Simulation in Abb. 7.6 links (Kurve b) die beste Anpassung bei longitudinaler Stauchung und Streckung der interatomaren Abstände ($u_l=0.36 \text{ \AA}$). Das dazugehörige Strukturmodell (b) zeigt Abb. 7.6 rechts. Die Verringerung der Kanalbreite geht hier mit einem, in der Messkurve nicht vorhandenen, Verschmieren der Peakstrukturen im Bereich $\theta=75^\circ-79^\circ$ ($11^\circ-15^\circ$) einher. Es treten ebenfalls ungünstige Anpassungstendenzen im Bereich $\theta=41-49^\circ$ auf. Die bis hierhin beste Anpassung des $c(8 \times 2)$ -Modells an die IST-Kurve liefert das in Abb. 7.6 rechts dargestellte Strukturmodell (a). Hier wurde die mittlere $[10]_{sc}$ -Atomkette (markiert mit (B)) der $c(8 \times 2)$ -Einheitszelle gegen die äußeren $[10]_{sc}$ -Atomreihen (markiert mit (A)) um 0.2 \AA in die $[10]_{sc}$ -Richtung versetzt. Diese Modifikation verringert die Eindringwahrscheinlichkeit des Kanals bei $\theta=79.2^\circ$ (10.8°) und öffnet gleichfalls den Kanal bei 74° (26°). Allerdings muss durch diese Änderung das Atom im Zentrum der Einheitszelle ebenfalls um 0.2 \AA verschoben werden, so dass im strengen Sinn keine $c(8 \times 2)$ -Einheitszelle mehr vorliegt. Inwieweit diese Änderungen der Einheitszelle Auswirkungen auf die LEED-Analysen haben, kann hier nicht beurteilt werden. Vielmehr sollen diese lateralen Strukturanpassungen an die IST-Untersuchungen einen Ausgangspunkt für weiterführende komplementäre LEED-Anpassungen vorgeben.

In einem zweiten Adaptionsschritt wurden die *Richtungen* dicht gepackter Atomreihen des Strukturmodells den vermessenen Winkellagen aus der experimentellen IST-Kurve angepasst. Obwohl aus den Richtungen der Atomreihen nicht direkt auf die absolute Größe der Einheitszelle geschlossen werden kann, führt die Manipulation der Winkellagen dicht gepackter Atomreihen unmittelbar zu einer Änderung des Seitenverhältnisses der Einheitszelle. Übereinstimmung mit den experimentellen Winkelpositionen wird erreicht, wenn das Seitenverhältnis der Einheitszelle von vier auf fünf erhöht wird. Aus Gründen der Kommensurabilität mit dem quadratischen Untergitter führt dies auf eine (10×2) -Einheitszelle, in der parallel zur $[10]_{sc}$ -Richtung neun Mn Atomen auf zehn Substratgitterabstände passen. Entlang der dichtgepackten $[10]_{sc}$ -Richtung liegt der interatomare Mn-Abstand bei 2.84 \AA . Trotz der Reduzierung des Atomvolumens im Vergleich zum $c(8 \times 2)$ -Strukturmodell ($c(8 \times 2)$: $a=2.92 \text{ \AA}$) liegt auch dieser Wert deutlich über dem interatomaren Abstand der hexagonalen (111)-Ebene der γ -Mn-Modifikation ($a=2.71 \text{ \AA}$), was auf eine starke Verspannung der Oberfläche schließen lässt. Im Rahmen der Messunsicherheiten ($\Delta\theta=\pm 0.5^\circ$) fallen für die (10×2) -Einheitszelle alle experimentell bestimmbaren Winkellagen mit den über:

$$\tan(\theta) = \frac{s \cdot n}{r / 9 \cdot m} \quad \text{mit } n, m \in \mathbb{Z} \quad (7.2)$$

berechenbaren Richtungen der Atomreihen aus dem angepassten IST-Strukturmodell (Abb. 7.8) zusammen. Für eine (10x2)-Einheitszelle gilt für Gl. 7.2 $s=2$ und $r=10$. Die aus dem Strukturmodell in Abb. 7.8 folgende Simulationskurve steht mit der IST-Messung in guter quantitativer Übereinstimmung (Abb. 7.7).

Unmittelbar nach der Aufnahme der IST-Kurven wurden an der präparierten 1 ML Mn/Cu(001)-Schicht qualitative LEED-Untersuchungen mittels einer SPA-LEED-Einheit durchgeführt (Abb. 7.9 links). Die Anordnung der auftretenden Überstrukturereflexe entsprechen

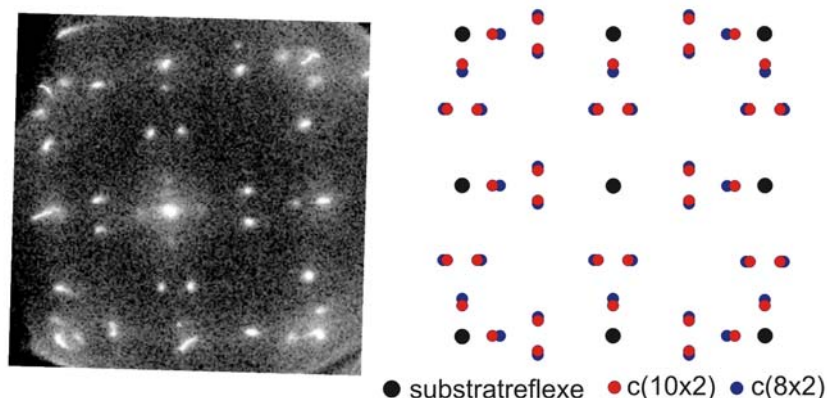


Abb. 7.9 links: unmittelbar vor der IST-Messung (schwarze Kurve in Abb. 7.5) aufgenommenes LEED-Bild an dem 1 ML Mn/Cu(001)-Film bei einer Elektronenenergie von $E=50.3$ eV rechts: berechnete Reflexpositionen einer hexagonalen $c(8 \times 2)$ (nach [FH92]). Die aus der IST-Strukturanpassung folgende $c(10 \times 2)$ -Einheitszelle hat eine geringfügige Verschiebung der LEED-Reflexpositionen zur Folge

zum einen den in [FH92] gezeigten LEED-Bildern und stehen zum anderen in Übereinstimmung mit den zu erwartenden LEED-Spots des in Abb. 7.3 dargestellten Strukturvorschlages. Allerdings kann weder aus den in [FH92] gezeigten noch aus den eigenen Beugungsbildern zweifelsfrei zwischen einer $c(8 \times 2)$ und einer $c(10 \times 2)$ Einheitszelle unterschieden werden. Ausgehend von dem LEED-Strukturvorschlag würde eine entsprechende Vergrößerung der Einheitszelle zu den in Abb. 7.9 rechts dargestellten geringfügigen Versetzungen der LEED-Spotpositionen führen.

Abgesehen von der Vergrößerung der Einheitszelle wurde die Atomreihe B im IST-Strukturmodell gegen die Atomreihen A (Abb. 7.8 rechts) um 0.2 \AA in Kettenrichtung versetzt. Diese Scherung benachbarter $[10]_{sc}$ -Atomketten führt zu leichten zick-zack Versetzungen entlang der dicht gepackten $[11]_{hc}$ -Atomreihen bei $\theta=60.9^\circ$ (29.1°) (siehe Abb. 7.8 links). Inwieweit die für die IST-Anpassung notwendigen Änderungen der lateralen Mn-Atompositionen mit quantitativen LEED-Analysen vereinbar sind muss noch geklärt werden. (Aus diesem Grund wird im Folgenden die etablierte Bezeichnung dieser hexagonalen Mn-Phase, d.h. „ $c(8 \times 2)$ “,

beibehalten.)

Wie aus dem direkten Vergleich der ähnlichen Strukturvorschläge beider Messmethoden zu entnehmen ist (Abb. 7.3 bzw. Abb. 7.8), eröffnen die aus den IST-Messungen gewonnenen zusätzlichen Realrauminformationen im Zusammenwirken mit quantitativen LEED-Analysen einen detaillierteren Einblick in reale Oberflächenstrukturen. Sowohl die sich ergänzende hohe Sensitivität der Ionenstrahltriangulation bezüglich lateraler Versetzungen ($<0.1 \text{ \AA}$) mit dem sehr hohen vertikalen Auflösungsvermögen quantitativer LEED-Analysen ($\sim 0.01 \text{ \AA}$) als auch die für beide Methoden ähnlichen strukturellen Periodizitätsanforderungen (LEED: $\sim 100 \text{ \AA}$; IST: $\sim 50 \text{ \AA}$) und nicht zuletzt die messtechnisch einfache Anwendung beider Methoden an ein und derselben Probe, lassen ein viel versprechendes komplementäres Zusammenwirken beider Messmethoden zur Erstellung detaillierter Strukturmodelle erwarten.

7.4 Der temperaturabhängige $c(8 \times 2)$ nach $c(2 \times 2)$ -Phasenübergang

Bei Wachstumstemperaturen unterhalb von 270 K finden keine Mn/Cu-Austauschprozesse an der Oberfläche statt, was zur Ausbildung quasihexagonaler Mn-Decklagen ($c(8 \times 2)$ bzw. $c(12 \times 8)$) (hierzu siehe Kapitel 7.5) führt. Das im Vergleich zur Cu(001)-Oberfläche ca. 10 % höhere Atomvolumen weist auf eine starke Oberflächenverspannung dieser metastabilen Mn-Strukturen hin. Kombinierte LEED- und Auger-Untersuchungen von [FH92] zeigen, dass die Erhöhung der Substrattemperatur auf über 270 K mit dem Übergang der $c(8 \times 2)$ Tieftemperaturphase in die energetisch stabile $c(2 \times 2)$ -Legierungsphase verbunden ist, einhergehend mit dem Einsetzen massiver Cu/Mn-Austauschprozesse.

In diesem Zusammenhang wurde mittels IST-Messungen untersucht, inwieweit die schrittweise Erhöhung der Substrattemperatur bis zum Phasenübergang Änderungen der lateralen Atompositionen durch temperaturabhängige Oberflächenrelaxation nach sich zieht. Abb. 7.10 zeigt IST-Kurven einer bei 180 K aufgewachsenen Mn-Monolage bei schrittweiser Erhöhung der Substrattemperatur (T_{meas}) von 180 K auf 350 K. Die Winkellagen dicht gepackter Atomreihen der $c(8 \times 2)$ -Phase bleiben in allen Temperaturbereichen unterhalb von 265 K erhalten. Dementsprechend vollzieht sich der Phasenübergang *nicht* durch eine graduelle Scherung hexagonaler Atomketten hin zu einer quadratischen Struktur. Eine quantitative Signalhöhenauswertung der für die beiden Atomanordnungen charakteristischen Kanalrichtungen ($[11]_{\text{sc}}$ bei $\theta=45^\circ$, $[11]_{\text{hc}}$ bei $\theta=30.5^\circ$) (die Signalhöhen wurden auf das Randomsignal bei $\theta=35.5^\circ$ bezogen) zeigt einen geringfügigen Anstieg der quadratischen Strukturanteile von ca. 10 % auf ca. 18 % bei Erwärmung des Targets von 180 K auf 265 K. Die im Winkelbereich des $[11]_{\text{sc}}$ -Kanals ($\theta=45^\circ$) schwachen Überlagerungen mit höherindizierten hexagonalen Kanälen ($\theta=42^\circ$ bzw. 45°) führen tendenziell zu einer Überschätzung der von sich aus schon geringen fcc-Anteile. Allerdings ist

ab $T_{\text{meas}}=245$ K auch am Kurvenverlauf das Herauswachsen des $[11]_{\text{sc}}$ -Kanals zu erkennen. Demzufolge rekonstruieren geringe Anteile (ca. 10%) der hexagonalen Struktur vor dem

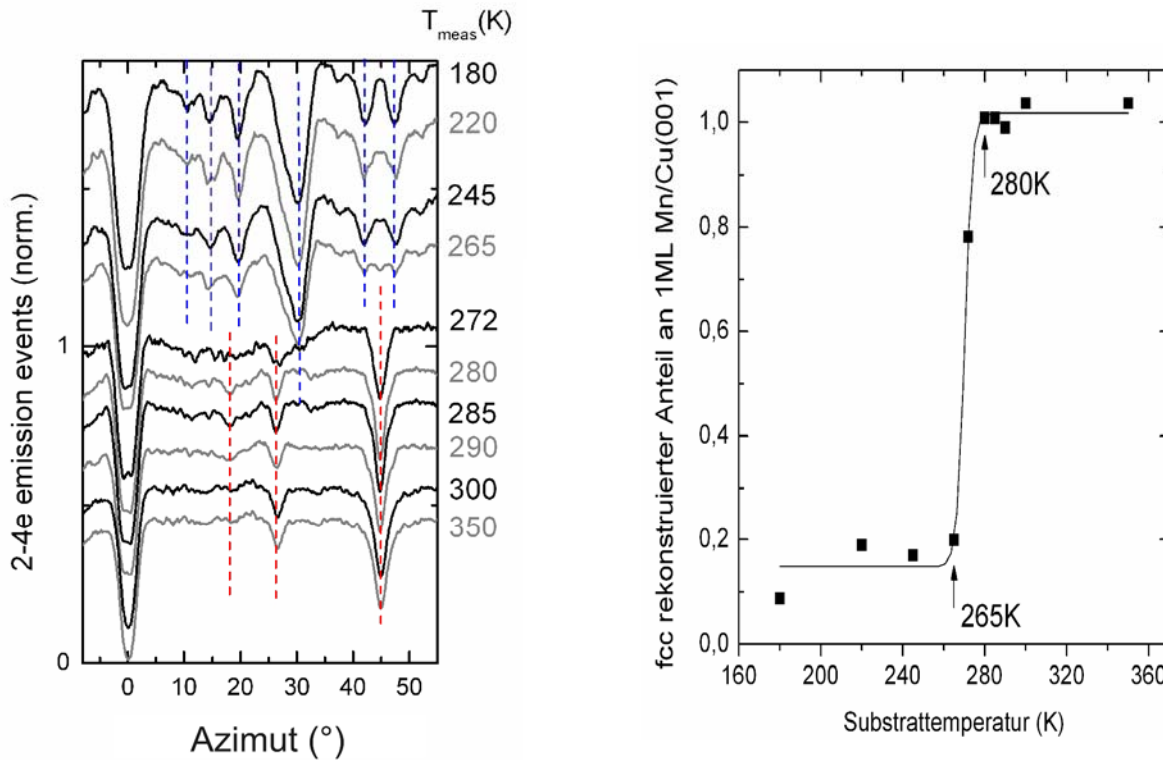


Abb. 7.10 links: IST-Kurven (29 keV H^0 bei $\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$) einer bei 180 K aufgewachsenen Mn-Monolage auf Cu(001) bei schrittweiser Erhöhung der Substrattemperatur (T_{meas}) von 180 K auf 350 K. Oberhalb von 265 K geht die hexagonale $c(8 \times 2)$ -Strukturphase in eine einfach quadratische $c(2 \times 2)$ -Legierungsphase über; rechts: Auf den IST-Messungen (links) basierende quantitative Abschätzung der quadratischen fcc(001)-Strukturanteile in Abhängigkeit von der Substrattemperatur. Die relativen Anteile wurden aus dem Verhältnis der Signalhöhen des $[11]_{\text{hc}}$ -Kanals bei $\theta=30.5^\circ$ und des $[11]_{\text{sc}}$ -Kanals bei $\theta=45.0^\circ$ bestimmt. Die Signalhöhen wurden auf das Randomsignal bei $\theta=35.5^\circ$ bezogen. Dargestellt ist das Verhältnis $h_{11}^{\text{sc}} / (h_{11}^{\text{sc}} + h_{11}^{\text{hc}})$.

eigentlichen zwischen 265 K und 280 K liegenden Phasenübergang. In diesem Temperaturintervall von nur $\Delta T=15$ K geht die hexagonale Mn-Oberflächenrekonstruktion irreversibel in eine einfach quadratische Struktur über. Dies steht in Übereinstimmung mit der in [FH92] beobachteten Auslöschung der $(1/8, 1/2)$ -LEED-Reflexe im Temperaturbereich von 270 K bis 290 K. Die beobachtbaren Winkellagen dicht gepackter Atomreihen der bei 280 K aufgenommenen IST-Kurve stimmen mit denen der Cu(001)-Oberfläche überein, woraus die vollständige Ausbildung einer quadratischen lateralen Atomanordnung folgt. Aufgrund der geringen Sensitivität für vertikale Versetzungen der Atompositionen kann über IST die sich in diesem Temperaturbereich ausbildende $c(2 \times 2)$ Mn-Legierungsphase nicht von einer quadratischen $p(1 \times 1)$ -Struktur unterschieden werden. Aus diesem Grund wurde auf eine quantitative Simulation der IST-Kurven im Temperaturbereich oberhalb von 280 K verzichtet.

7.5 Die Cu(001)c(12x8)Mn-Phase

Ein verändertes Ensemble an LEED-Überstrukturreflexen ergibt sich im Bedeckungsbereich von zwei Monolagen Mn bei Wachstumstemperaturen unterhalb von 270 K [FH92]. Die auftretenden c(12x8)-Beugungsreflexe verdrängen bei Bedeckungen zwischen 1.8 und 2.5 Monolagen vollständig die c(8x2)-LEED-Spots, was auf eine Rekonstruktion beider Mn-Lagen

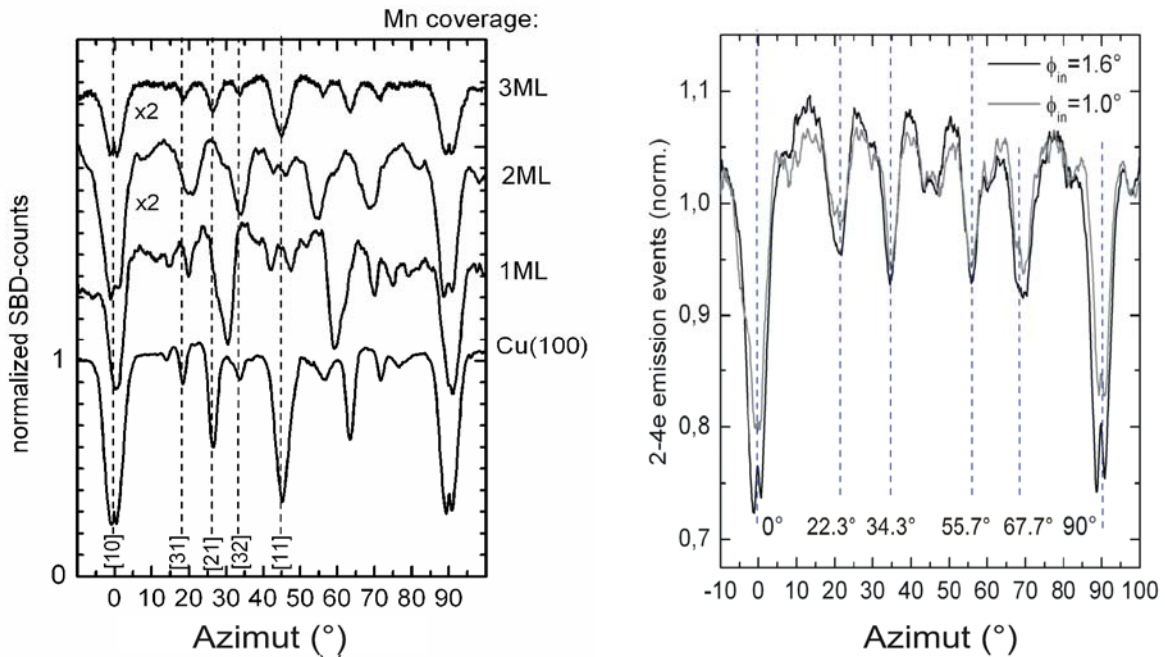


Abb. 7.11 links: gemessene IST-Kurven (azimutale Abhängigkeit der 2-4e Emissionsereignisse angeregt durch 29 keV H^0 -Projektilen $\phi_{in}=1.6^\circ$) für das Cu(001)-Substrat und für eine, zwei und drei Monolagen Mn auf Cu(001) ($T_{growth}=190$ K, $p=0.007$ ML/s). Entsprechend den über LEED nachweisbaren Strukturphasen (1 ML Mn/Cu(001): c(8x2)-Phase, 2 ML: c(12x8), 3 ML p(1x1)) weisen die IST-Kurven ebenfalls für die einzelnen Mn-Bedeckungen unterschiedliche Winkellagen und Intensitäten auftretender Kanäle auf. rechts: IST-Kurven an der c(12x8)-Mn-Phase (Rohdaten ohne Untergrundabzug, der 1.0 auf der Ordinate entspricht eine Zählrate von 2.2 kcts/s) Die gezeigten Kurven wurden bei einem polaren Einfallswinkel von $\phi_{in}=1.6^\circ$ bzw. 1.0° aufgenommen. Beide Messungen liefern vergleichbare Signalhöhen aller auftretenden Kanäle

hindeutet. Das aus den stark gedämpften Intensitätssoszillationen (Abb. 7.2) resultierende raue Lagenwachstum führt zur Verbreiterung der LEED-Reflexe einhergehend mit der Erhöhung des inelastischen LEED-Untergrundsignals. Eine quantitative LEED-Analyse der c(12x8)Mn-Phase wurde wegen der Größe der Einheitszelle (ca. 96 Atome je Lage) bisher nicht realisiert. Erste IST-Targetstromuntersuchungen an dieser Struktur zeigten im Vergleich zur Messung an der c(8x2)-Phase veränderte Winkellagen dichtgepackter Atomreihen. Auf der Basis dieser Messungen wurde ein komplexer lagenabhängiger Strukturvorschlag für die c(12x8)-Phase entwickelt ([BP03], [PB03], hier nicht gezeigt). Da die Signale bei Targetstrom-Triangulationskurven erhöhte Informationstiefen von ca. zwei atomaren Lagen aufweisen (siehe Kap. 6.4), wurden in

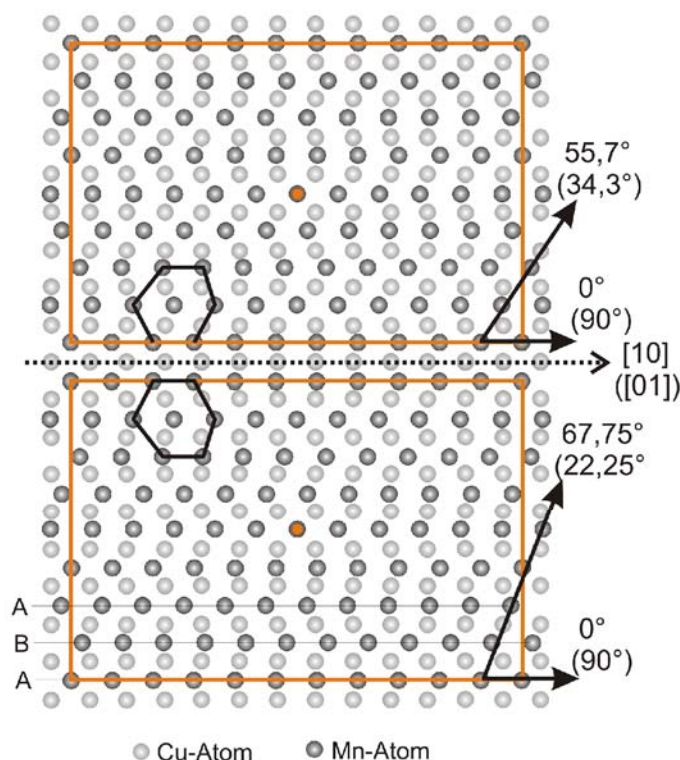


Abb. 7.12: Aus den IST-Messungen folgendes quasihexagonales c(12x8)-Strukturmodell: Gezeigt sind zwei der insgesamt vier auftretenden Domänen. Die obere c(12x8)-Einheitszelle kann durch Spiegelung an der entlang der $[10]_{sc}$ -Richtung verlaufenden Domänengrenze (-----) in die untere Einheitszelle überführt werden. Die beiden anderen Domänen ergeben sich durch Drehung der Gezeigten um 90° . Der interatomare Mn-Mn-Abstand beträgt entlang der dicht gepackten $[10]_{sc}$ -Richtung 2.78 Å. Die Atomreihen B sind um 0.3 Å zu den benachbarten Atomreihen A in Kettenrichtung verschoben.

diesem Strukturmodell die auftretenden Winkellagen dichtgepackter Atomreihen zwei unterschiedlich rekonstruierten Mn-Lagen zugewiesen.

Aktuelle IST-Untersuchungen der $c(12 \times 8)$ -Struktur mittels Emissionsstatistik widerlegen die Annahme unterschiedlich rekonstruierter Mn-Lagen. So zeigen die auf die oberste atomare Lage sensitiven IST-Kurven (2-4e Emissionsereignisse) keine Reduzierung der Signale, die entsprechend dem in [PB03] aufgestellten Strukturmodell Kanälen der unteren Mn-Lage zuzuordnen sind (z.B. die Kanalrichtung bei $\theta=33.9^\circ$). Stattdessen werden alle in der IST-Kurve auftretenden Kanalrichtungen durch die oberste atomare Mn-Lage erzeugt. Auch eine Verringerung des polaren Einfallswinkels ϕ_{in} führt zu keiner selektiven Reduzierung bestimmter Kanalrichtungen (Abb. 7.11 rechts), wie es für eine unterschiedliche Rekonstruktion der Deck- und Zwischenlage zu erwarten wäre. Dementsprechend ist eine Reinterpretation der in [PB03] gezeigten Targetstromkurven und eine Revision des darauf basierenden Strukturvorschlages notwendig.

Abb. 7.11 links zeigt IST-Kurven (2-4e Emissionsereignisse) der Mn-Tieftemperaturphasen im Bedeckungsbereich von einer bis drei Monolagen. Einhergehend mit der Modifikation des LEED-Beugungsbildes von $c(8 \times 2)$ nach $c(12 \times 8)$ führt die Deposition einer zusätzlichen Mn-Lage zu einer vollständigen Änderung auftretender Richtungen dichtgepackter Atomreihen.

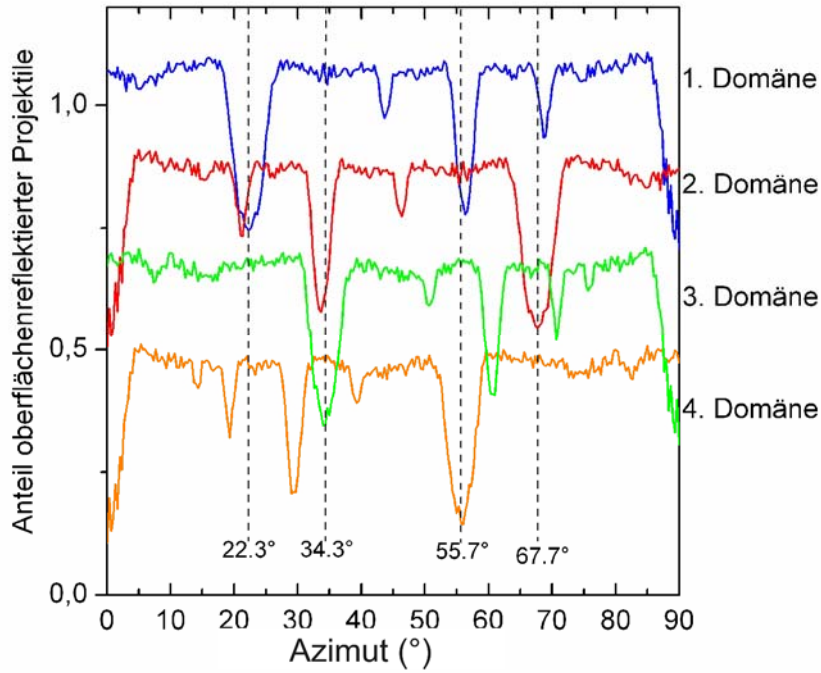


Abb. 7.13: Durch Trajektorien-simulation (29 keV H^0 , $\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$) berechneter Anteil oberflächenreflektierter H^0 -Projektile der vier auftretenden $c(12 \times 8)$ -Domänen des IST-Strukturmodells (siehe Abb. 7.12). Die in das Strukturmodell (Abb. 7.12) eingetragenen Kanalrichtungen entsprechen den Signalen der 1. und 2. Domäne. Für die Simulation wurde ein reduziertes Molierpotential ($a=0.18 \text{ a. u.}$) und Debyetemperaturen von $\Theta_{D\perp}=172 \text{ K}$, $\Theta_{D\parallel}=130 \text{ K}$ bei einer Targettemperatur von $T=200 \text{ K}$ verwendet. Die simulierte IST-Kurve (Abb. 7.14) ergibt sich aus der Überlagerung der Signalbeiträge der vier Domänen.

IST-Kurven höherer Elektronenanzahlen (25-30e Ereignisse), die wie in Kap. 6.2 gezeigt auch Signalanteile tieferer Atomlagen enthalten, weisen keine Signaturen der ursprünglichen $c(8 \times 2)$ -Struktur auf. Dementsprechend folgt in Übereinstimmung mit den LEED-Analysen eine $c(12 \times 8)$ -Rekonstruktion des ganzen Mn-Films. Die durch eine erhöhte Oberflächenrauigkeit der $c(12 \times 8)$ Mn-Phase verursachte generelle Verringerung der 2-4e Emissionsereignisse hat eine Reduzierung aller Peakhöhen zur Folge. Abgesehen von den durch das Substrat vorgegebenen $[10]_{\text{sc}}$ bzw. $[01]_{\text{sc}}$ -Vorzugsrichtungen weist die $c(12 \times 8)$ -Struktur vier weitere dicht gepackte Atomreihen bei $\theta=22.3^\circ \pm 0.6^\circ$, $33.9^\circ \pm 0.7^\circ$, $56.1^\circ \pm 0.6^\circ$ und $68.5^\circ \pm 0.6^\circ$ mit vergleichbaren Intensitäten auf. Das symmetrische Auftreten der Winkellagen dieser Kanäle bezüglich der Symmetrieachse bei $\theta=45^\circ$ folgt, analog zur $c(8 \times 2)$ -Struktur, aus einer senkrechten Orientierung identischer Domänen. Insgesamt sechs dicht gepackte Atomreihen sind allerdings mit einer zweidimensionalen Struktur nicht kompatibel.

Vielmehr kann aus den symmetrisch zur $[10]_{\text{sc}}$ bzw. $[01]_{\text{sc}}$ - auftretenden gleichrangigen Peaks auf eine spiegelsymmetrische Domänenorientierung geschlossen werden. Eine solche Pitsch-Orientierung [PI59] gewährleistet ein stressfreies Aneinandergrenzen von jeweils zwei spiegelsymmetrischen hexagonalen Domänen. Die Symmetrieachsen werden durch die Vorzugsrichtungen $[10]_{\text{sc}}$ ($\theta=0^\circ$) bzw. $[01]_{\text{sc}}$ ($\theta=90^\circ$) vorgegeben.

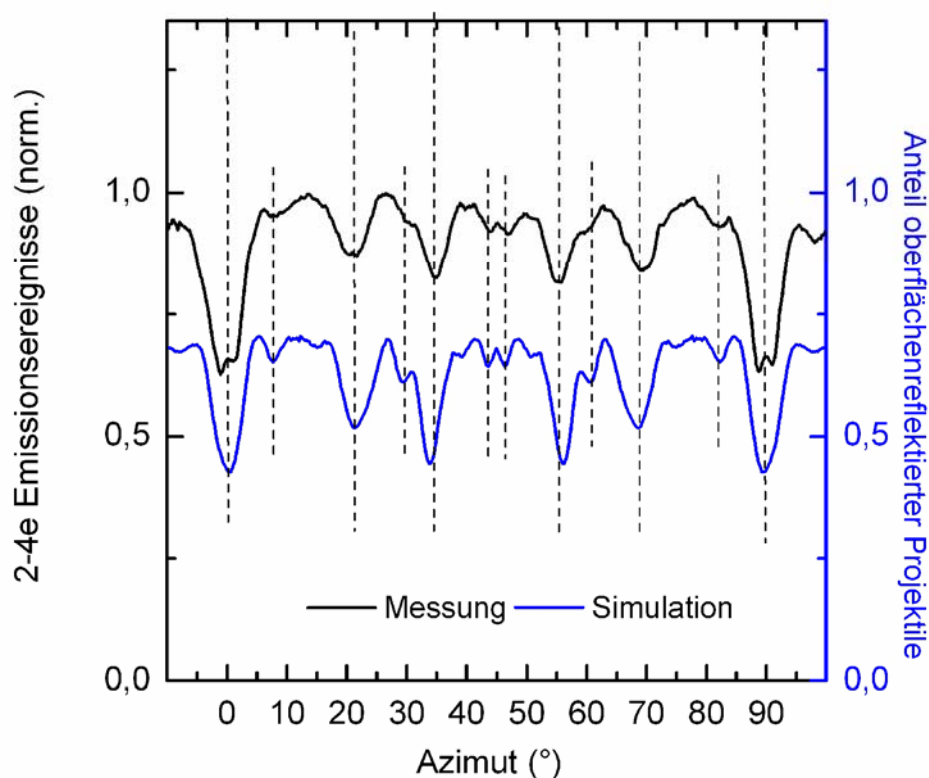


Abb. 7.14: Vergleich zwischen der experimentellen IST-Kurve (schwarz) und der IST-Simulation (blau) für das in Abb. 7.12 dargestellte $c(12 \times 8)$ -Strukturmodell. Sowohl die Winkellagen auftretender Kanäle als auch die Rangfolge der Signalhöhen stimmen mit der IST-Messung überein.

Das auf der Basis der IST-Messungen unter Berücksichtigung der $c(12 \times 8)$ -Einheitszelle aufgestellte $\text{Cu}(001)c(12 \times 8)\text{Mn}$ -Strukturmodell zeigt Abb. 7.12. Dargestellt sind die quasihexagonalen $c(12 \times 8)$ -Einheitszellen zweier pitschorientierter Mn-Domänen. Durch Spiegelung an der $[10]_{\text{sc}}$ -Richtung kann eine Domäne in die andere überführt werden. Die beiden anderen Domänen sind um 90° gedreht und weisen dieselbe Spiegelsymmetrie bezüglich der $[01]_{\text{sc}}$ -Richtung auf. Dementsprechend tragen jeweils zwei der vier Domänen zu den IST-Signalen bei $\theta=0^\circ$ bzw. $\theta=90^\circ$ bei, wohingegen die Peaks der anderen Hauptrichtungen von nur einer der vier Domänen verursacht werden.

Dies erklärt die im Vergleich zu den anderen Kanalrichtungen mehr als doppelt so hohen IST-Signale bei $\theta=0^\circ$ bzw. $\theta=90^\circ$. Insgesamt entspricht die sich über zwei Lagen erstreckende $c(12 \times 8)$ -Mn-Phase einer quasihexagonalen Atomanordnung mit einem mittleren Bindungswinkel von $\gamma \approx 61.7^\circ$. Der interatomare Abstand entlang der $[10]_{\text{sc}}$ ($[01]_{\text{sc}}$) beträgt 2.79 \AA (11 Mn-Atome auf 12 Substratgitterabstände). Die im Vergleich zur $c(8 \times 2)$ -Monolage erhöhte Mn-Koordination der doppelagigen $c(12 \times 8)$ -Struktur führt dementsprechend zu einer Absenkung der interatomaren Mn-Atomabstände um ca. 2 %. Das und die aus den Wachstumsoszillationen zu entnehmende erhöhte Anzahl an Gitterdefekten führen bei fortschreitender Mn-Bedeckung

zu einer Relaxation des stark verspannten Monolagenfilms.

Die über:

$$\tan(\theta) = \frac{s \cdot n}{r/11 \cdot m} \quad \text{mit } n, m \in \mathbb{Z} \quad (7.3)$$

berechenbaren Winkellagen dichtgepackter Atomreihen der c(12x8)-Struktur stimmen mit den azimuthalen Peakpositionen der IST-Messung im Rahmen der Messunsicherheiten (siehe markierte Winkel in Abb. 7.11 rechts) überein (für die c(12x8) Einheitszelle gilt $s=8$ und $r=12$). Die Anpassung an die IST-Messkurve führte auch in diesem Fall auf eine Scherung der Atomreihen B zu den Atomreihen A im Bereich von $(0.3 \pm 0.1) \text{ \AA}$ (Abb. 7.12). Für die Simulation der IST-Kurve wurden die Anteile oberflächenreflektierter Projektile der einzelnen c(12x8)-Domänen bestimmt und anschließend aufaddiert und gemittelt. Zum Ausgleichen der durch die hohe Filmrauigkeit reduzierten Peakhöhen wurde in der Simulation die senkrechte Debyetemperatur auf $\Theta_{D\perp}=130 \text{ K}$ abgesenkt. Die damit verbundene stärkere vertikale Auslenkung der Gitteratome führt zu einer verringerten Reflektivität der Projektile in zufälliger azimuthaler Einfallsrichtung und damit gleichfalls zu einer Reduzierung der simulierten Peakhöhen. Die Einzelbeiträge der vier c(12x8)-Domänen zeigt Abb. 7.13. Die Überlagerung dieser Domänenbeiträge führt auf die in Abb. 7.14 dargestellte IST-Simulationskurve. Zu erkennen ist, dass die dicht gepackten Kanäle die azimuthalen Winkellagen und die zum Teil komplexen Überlagerungen mit Kanälen höherer Ordnung die Breite und Form der Peaks bestimmen. Anhand der in quantitativer Übereinstimmung mit der Messung stehenden IST-Simulationskurve können abgesehen von den Richtungen dichtgepackter Atomreihen auch die aus der Überlagerung resultierenden Beiträge von Kanälen höherer Ordnung verifiziert werden.

Eine der Cu(001)c(12x8)Mn-Phase (Abb. 7.12) ähnliche Rekonstruktion zeigen Fe/Cu(001)-Filme in den Phasen TT II [ZF94] und RT III [WT93]. Auch hier bildet der Fe-Film vier Pitsch-orientierte bcc(110)-Domänen aus, die in diesem Fall hexagonalen (nx1)-Einheitszellen zuzuordnen sind. Die IST-Kurven beider Strukturen zeigen dementsprechend einen ähnlichen Verlauf (vgl. Abb. 7.14 mit RT III in Abb. 8.1) Die Pitsch-Orientierung der Fe/Cu(001)-RT III-Strukturphase ist im Unterschied zu dem in dieser Arbeit erstmalig veröffentlichten Cu(001)c(12x8)Mn-Strukturmodell auch auf der Basis quantitativer LEED-Analysen weitgehend etabliert ([HM96], [HM04]).

Im Tieftemperaturregime führen Bedeckungen von mehr als zwei Mn-Monolagen zum Verschwinden der c(12x8)-LEED-Reflexe. Beobachtet werden dann schwache p(1x1)-Beugungsintensitäten. Der deutlich erhöhte inelastische Untergrund lässt auf eine kontinuierlich

zunehmende Filmrauigkeit schließen. Dementsprechend fällt auch die Intensität spekulär reflektierter He-Projektile nach der Ausbildung des zweiten Intensitätsmaximums stetig ab (Abb. 7.2). Mittels protoneninduzierter Augermessungen sind auch in diesem Bedeckungsbereich keine Cu-Anteile an der Filmoberfläche nachweisbar (siehe Abb. 7.17), dementsprechend liegt oberhalb von zwei Monolagen durchmischungsfreies Inselwachstum vor. IST-Untersuchungen an einem drei Monolagen Mn-Film weisen eine zur Cu(001)-Oberfläche identische Anordnung dichtgepackter Atomreihen auf. (Abb. 7.11). Die auf tiefere Lagen sensitiven IST-Kurven unter Verwendung höherer Elektronenanzahlen zeigen ebenfalls ausschließlich fcc (001)-Strukturanteile. Demzufolge rekonstruiert der c(12x8)-Mn-Film bei fortschreitender Bedeckung ($\theta > 2.0$ ML) in eine einfach quadratische p(1x1)-Struktur einhergehend mit einsetzendem 3d-Inselwachstum.

7.6 Die Cu(001)p2gg(4x2)Mn-Phase

Das Wachstum von mehr als 0.3 Monolagen Mn auf Cu(001) oberhalb von 270 K führt zur Ausbildung von c(2x2)-LEED-Reflexen. Bei 420 K werden bei Bedeckungen über einer Monolage p2gg(4x2)-LEED-Spots beobachtet. Ursächlich für die Ausbildung beider Überstrukturen ist der substitutionelle Einbau von Mn-Atomen in die Cu(001)-Oberfläche. Dabei wird in der c(2x2)-Legierung jedes zweite Cu-Atom durch ein Mn-Atom ersetzt. Die in dieser Strukturphase schachbrettartig in die quadratische Cu(001)-Oberfläche eingebauten Mn-Atome weisen eine vertikale Korrugation von ca. 0.3 Å auf [WG93]. Die Bestimmung der Atomanordnung beider Oberflächenlegierungen mittels STM wird durch Einflüsse der elektronischen Struktur erschwert. So legen neuere Untersuchungen [WH00] eine Reinterpretation der bis dahin an diesen Legierungsphasen durchgeführten STM-Analysen ([NH94], [KK95], [WJ96]) nahe. Da die Cu(001)c(2x2)Mn-Legierung als Modellsystem für die Ausbildung geordneter zweidimensionaler Legierungsphasen gilt, sind sowohl die chemische Zusammensetzung als auch die strukturellen Parameter und die atomaren Mechanismen, die zur Ausbildung dieser langreichweitig geordneten c(2x2)-Struktur führen, auf der Basis zahlreicher Untersuchungen weitgehend aufgeklärt worden ([FJ97], [BN99]). Weit weniger ist über die p2gg(4x2)-Phase bekannt.

Die sich bei Wachstumstemperaturen von 400 K ausgebildete c(2x2)-Legierung wird im Bedeckungsbereich von 1.2 bis 2.0 ML von der p2gg(4x2)-Strukturphase abgelöst. Kombinierten LEED- und Auger-Untersuchungen zufolge ist die p2gg(4x2)-Rekonstruktion auf die oberste Lage beschränkt. Die Zwischenlage wird unverändert einer c(2x2)-Legierung zugeordnet. Für die p2gg(4x2)-Phase wurde in [FH92] ein zur c(2x2)-Legierung vergleichbarer Cu-Anteil von ca. 50 % angenommen. Genauere Angaben zur Cu-Konzentration der einzelnen an der p2gg(4x2)-Legierungsbildung beteiligten Lagen wurden in [FH92] nicht gemacht. Bei Erhö-

hung der Substrattemperatur auf über 470 K geht die metastabile $p2gg(4 \times 2)$ -Phase in die energetisch bevorzugte $c(2 \times 2)$ -Legierung über. Die nominelle Bedeckung von mehr als einer Monolage weist dabei auf eine $c(2 \times 2)$ -Legierung der obersten beiden Atomlagen hin. Allerdings kann die oberhalb von 450 K einsetzende Volumendiffusion [FH92] den nominellen Mn-Anteil an der Oberfläche insgesamt reduzieren.

Aktuelle Messungen von Pan *et al.* [PP05] zeigen, dass die $p2gg(4 \times 2)$ -Struktur eine im Vergleich zur $c(2 \times 2)$ -Legierung fast doppelt so hohe Änderung der kompressiven Oberflächenspannung aufweist, was im Vergleich zur $c(2 \times 2)$ -Phase auf einen höheren Mn-Anteil in der obersten Legierungslage hindeutet. Die im Vergleich zum Cu-Substrat ($a=2.556 \text{ \AA}$) größere Mn-Mn Bindungslänge führt im Tieftemperaturregime, wie in den vorigen Abschnitten gezeigt, zu hexagonalen Rekonstruktionen der durchmischungsfreien Mn-Adsorbatfilme. Die Gitterkonstanten der mit zunehmender Mn Bedeckung auftretenden Tieftemperaturphasen ($c(8 \times 2)$: $a=2.84 \text{ \AA} \rightarrow c(12 \times 8)$: $a=2.79 \text{ \AA} \rightarrow p(1 \times 1)$: $a=2.556 \text{ \AA}$ (Inselwachstum)) weisen auf eine kontinuierliche Reduzierung der Gitterfehlانpassung hin. Oberhalb von 272 K sind thermisch induzierte Mn-Cu Austauschprozesse möglich. Die Reduzierung der Gitterfehlانpassung wird hier durch den massiven Einbau von Cu-Atomen in die Mn-Adsorbatlage mit anschließender Ausbildung einer $c(2 \times 2)$ -Oberflächenlegierung realisiert. So liegt der mittlere interatomare Abstand einer nicht ferngeordneten $Mn_{0.48}Cu_{0.52}$ -Volumenlegierung bei $a=2.66 \text{ \AA}$ [PP05], d.h. weit unter den Gitterkonstanten der Mn/Cu(001)-Tieftemperaturphasen. Die in der $c(2 \times 2)$ -Strukturphase vorhandene Gitterfehlانpassung führt zur starken Auswärtsrelaxation der Mn-Atome ($\Delta z=0.3 \text{ \AA}$) und zur Erhöhung der kompressiven Oberflächenspannung um $\Delta\tau=-1.2 \text{ N/m}$ (0.5 ML bei $T_{\text{growth}}=300 \text{ K}$) im Vergleich zur Cu(001)-Oberfläche ([PP05], siehe auch [HW05]). Fortschreitendes Aufdampfen von Mn bei Raumtemperatur hat bis zu einer Bedeckung von 2.0 ML keine Änderung der Oberflächenspannung zur Folge. Die bis zu einer nominellen Bedeckung von 1.0 ML deutlich ausgeprägten $c(2 \times 2)$ -LEED Reflexe waschen dagegen bei fortschreitender Mn-Deposition zunehmend aus.

Im Unterschied dazu nimmt bei erhöhter Wachstumstemperatur ($T_{\text{growth}}=420 \text{ K}$) die Verspannung des $c(2 \times 2)$ -Legierungsfilmes bis zu einer nominellen Bedeckung von ca. 1.2 ML zu. Die sich im Bedeckungsbereich von 1.2 bis 2.0 ML ausbildende $p2gg(4 \times 2)$ -Legierungsphase zeigt demzufolge eine weitaus größere Änderung der kompressiven Oberflächenspannung ($\Delta\tau=-2.3 \text{ N/m}$) als die $c(2 \times 2)$ -Legierung bei Raumtemperatur. Auf der Basis dieser Messungen und struktureller Analysen mittels Oberflächenbeugung (SXR) wurde in [PP05] das in Abb. 7.15 dargestellte Szenario für die Formierung der $c(2 \times 2)$ bzw. $p2gg(4 \times 2)$ -Phase gefolgert.

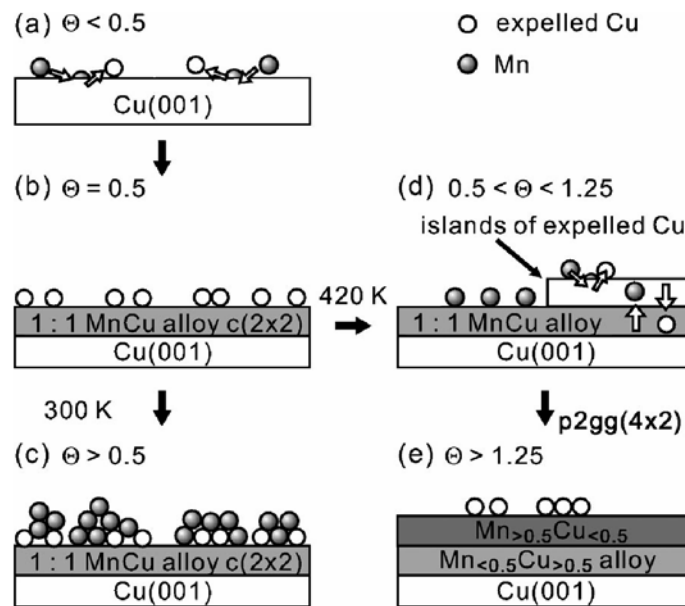


Abb. 7.15: Schematisches Modell für die wachstumstemperaturabhängige Ausbildung der MnCu Oberflächenlegierung aus [PP05].: Die Abbildungen links (a)-(c) und rechts (d)-(e) zeigen die strukturelle Entwicklung bei Wachstumstemperaturen von 300 K und 420 K. Bei 300 K formiert sich nur *eine* c(2x2)-Legierungslage. Zusätzliche Mn-Deposition (d.h. Bedeckungen von mehr als 0.5 ML) führt nicht zur Ausbildung einer weiteren langreichweitig geordneten Struktur. Im Unterschied dazu wird bei 420 K eine zwei Lagen umfassende Legierung ausgebildet. Wobei Interlagenaustauschprozesse zu einer Mn-Konzentration in der ersten Lage von über 50 % und in der zweiten Lage von unter 50 % führen. Dieses Modell steht im Dissens mit hier durchgeführten Messungen und STM-Untersuchungen von [KK95] (siehe dazu Abb. 7.16)

Bei 300 K werden die adsorbierten Mn-Atome bis zu einer Bedeckung von 0.5 ML in die Cu(001) Oberfläche eingebaut. Die Substitution von Cu-Atomen durch größere Mn-Atome führt zum beobachteten linearen Anstieg der Oberflächenspannung. Nach der Ausbildung *einer* c(2x2)-Legierungslage ist weiterer Interlagenaustausch weitgehend unterdrückt, so dass im Bedeckungsbereich oberhalb von 0.5 ML Inselwachstum einsetzt. Insbesondere wird aus der oberhalb von 0.5 ML nicht weiter steigenden Oberflächenspannung in [PP05] die Ausbildung einer zweiten geschlossenen c(2x2)-Legierungslage weitgehend ausgeschlossen.

Bei erhöhten Wachstumstemperaturen ($T_{\text{growth}}=420$ K) werden bis zu einer Bedeckung von 0.5 ML die adsorbierten Mn-Atome durch Interlagenaustausch in die Cu(001)-Oberfläche eingebaut, was analog zum Raumtemperaturwachstum zur Ausbildung einer c(2x2)-Legierung der obersten Lage führt. Die dabei in die Wachstumsphase verdrängten Cu-Atome bilden Inseln oder lagern sich an den Terrassenkanten des Substrates an. Im Bedeckungsbereich zwischen 0.5 ML und 1.25 ML führt die fortgesetzte Mn-Durchmischung dieser Cu-Insel in der Wachstumsphase zur Ausbildung einer zweiten geschlossenen Legierungslage, der p2gg(4x2)-Legierung. Die SXRD-Strukturanalyse dieser zweilagigen Cu/Mn-Legierungsphase weist auf einen erhöhten Mn-Anteil von über 50 % in der obersten Lage hin, einhergehend mit einer Mn-Entmischung (dealloying) der Zwischenlage. In der Zwischenlage wird von einem Mn-Anteil von ca. 35 %

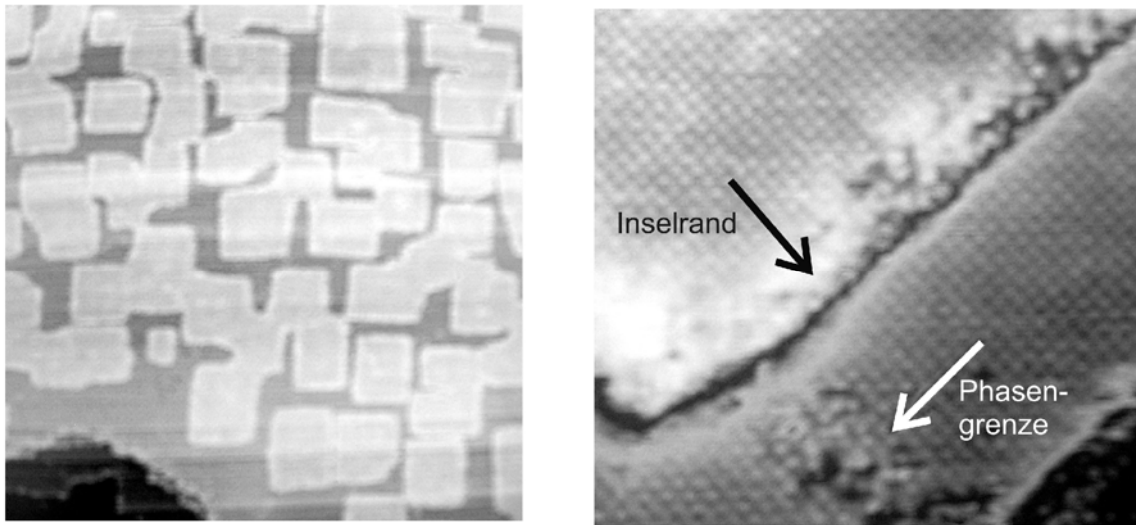


Abb. 7.16 links: $270 \times 270 \text{ nm}^2$ großes STM-Bild einer Cu(001)-Oberfläche nach der Deposition von ca. 0.7 ML Mn ($T_{\text{growth}}=300 \text{ K}$). Zu erkennen sind zweidimensionale quadratische Inseln im ersten Stadium der Koaleszenz. Die $[10]_{\text{sc}}$ und $[01]_{\text{sc}}$ -Richtungen verlaufen entlang der Inselränder. rechts: vergrößerter ($16 \times 16 \text{ nm}^2$) und um 45° gedrehter Ausschnitt des STM-Bildes links. Klar zu erkennen ist die $c(2 \times 2)$ -Rekonstruktion der Inseln *und* der Terrassen. Der weiße Pfeil markiert eine Phasengrenze, die mit einer ungeordneten Übergangsregion einhergeht. Der schwarze Pfeil markiert den Rand der $c(2 \times 2)$ -rekonstruierten Insel. Insgesamt weisen die STM-Bilder eindeutig auf die lagenweise Ausbildung eines doppelagigen $c(2 \times 2)$ -Oberflächenlegierungsfilmes bei Raumtemperatur hin, in Konflikt mit dem Modell aus Abb. 7.15. Die hier gezeigten STM-Bilder wurden [KK95] entnommen.

ausgegangen. Der während der Ausbildung der $p2gg(4 \times 2)$ -Legierung steigende Mn-Anteil in der obersten Lage ist demnach für die Erhöhung der kompressiven Oberflächenspannung dieser Legierung im Vergleich zur $c(2 \times 2)$ -Phase verantwortlich. Das in [PP05] vorgeschlagene Strukturmodell für die $p2gg(4 \times 2)$ -Phase wird zusammen mit anderen Strukturvorschlägen ([KK95], [FH92]) im nächsten Abschnitt diskutiert. In Konflikt mit dem in [PP05] vorgeschlagenen Wachstumsszenario bei Raumtemperatur ($T_{\text{growth}}=300 \text{ K}$) stehen atomar aufgelöste STM-Aufnahmen von Kraan et. al. [KK95], die im Bedeckungsbereich von 0.7 ML koaleszierende quadratisch geformte zweidimensionale Inseln zeigen (Abb. 7.16 links). Dabei weisen sowohl die Terrassen als auch die Inseln eine deutlich zu erkennende $c(2 \times 2)$ -Rekonstruktion auf (Abb. 7.16 rechts), was klar für die Ausbildung von zwei $c(2 \times 2)$ -Legierungslagen bei Raumtemperatur spricht. Gestützt werden diese STM-Untersuchungen von den in Abb. 7.2 gezeigten Intensitätsoszillationen gestreuter He-Projektile. Hier folgt aus der bei Raumtemperatur zu beobachtenden Intensitätsoszillation Lagenwachstum bis zu einer Bedeckung von 1.0 ML, im Unterschied zu dem in [PP05] angenommenen Inselwachstum oberhalb von 0.5 ML. Allerdings kann aus den Wachstumsoszillationen nicht auf den Grad der Durchmischung der Legierungslagen geschlossen werden.

Die chemische Zusammensetzung der obersten Atomlage während des Wachstums von

Mn/Cu(001) wurde mittels Anregung der Cu-MVV-Augerlinie (bei $E_e=60$ eV) durch streifend einfallende ($\phi_{in}=1.6^\circ$) 25 keV-Protonen untersucht. Der streifende Einfall gewährleistet eine auf die oberste atomare Lage beschränkte Anregungstiefe, so dass bei Lagenwachstum direkt aus der Entwicklung des Cu-Augersignals auf den Cu-Anteil in der Oberfläche geschlossen werden kann [PL93]. Genauer ergibt sich bei der konventionellen elektroneninduzierten Auger-Spektroskopie für die relative Cu-Auger-Intensität I_{Cu} wegen der exponentiell mit der Anregungstiefe abfallenden Austrittswahrscheinlichkeit der Augerelektronen bei Lagenwachstum:

$$I_{Cu} = \frac{\sum_{n=0}^{\infty} C_{Cu,n} e^{(-n/\lambda)}}{I_0} \quad \text{mit} \quad I_0 = \sum_{n=0}^{\infty} e^{(-n/\lambda)} \quad (7.4)$$

mit der Cu-Substratkonzentration der n-ten Lage $C_{Cu,n}$. Die Informationstiefe λ in Einheiten von ML wird bei der protoneninduzierten Augerspektroskopie nicht durch die Austrittslänge der Augerelektronen im Kristall, sondern vielmehr durch die Anregungstiefe bestimmt. Bei durchmischungsfreiem Lagenwachstum vereinfacht sich wegen $C_{Cu,n}=\{1 \text{ oder } 0\}$ Gleichung 7.4 zu:

$$I_{Cu,k} = \frac{\sum_{k=0}^{\infty} e^{(-k/\lambda)}}{I_0} = e^{\left(\frac{-k}{\lambda}\right)} \quad (7.5)$$

wobei $I_{Cu,k}$ der relativen Cu-Auger-Intensität bei einer Bedeckung mit k-Adsorbatlagen entspricht. Demzufolge kann bei durchmischungsfreiem Lagenwachstum aus der mit zunehmender Bedeckung exponentiell abklingenden Substrataugerintensität auf die Informationstiefe λ geschlossen werden. Experimentell wurde zur Bestimmung von λ die Änderung der protoneninduzierten Cu-MVV-Augerintensität während des Wachstums von 4.0 ML bei $T_{growth}=190$ K herangezogen (Abb. 7.17), da hier die Bedingungen für die Anwendbarkeit von Gl. 7.5 zumindest für das Wachstum der ersten Lagen erfüllt sind. Der azimutale Einfallswinkel ($\theta=10^\circ$ bzgl. der [10]-Gitterrichtung) wurde so gewählt, dass eine mögliche Beeinflussung der Augerintensität durch ioneninduzierte Beugungsreflexe weitgehend auszuschließen ist. Die protoneninduzierten Elektronenspektren wurden in-situ während des Depositionsprozesses aufgenommen. Abb. 7.17 links zeigt exemplarisch die Änderung der Elektronenspektren im Bereich des Cu-MVV-Augersignals mit steigender Mn-Bedeckung. Für die quantitative Auswertung wurden alle Elektronenspektren auf die Elektronenintensität bei $E=75$ eV normiert. Als Signaluntergrund wurde das Elektronenspektrum im Bedeckungsbereich von 4.0 ML verwendet. Die nach Abzug dieses Untergrundes separierbaren gaußförmigen Cu-Augerpeaks zeigt das Inset von Abb. 7.17 links. Um die Beeinflussung des Cu-MVV-Augersignals durch die höherenergetische

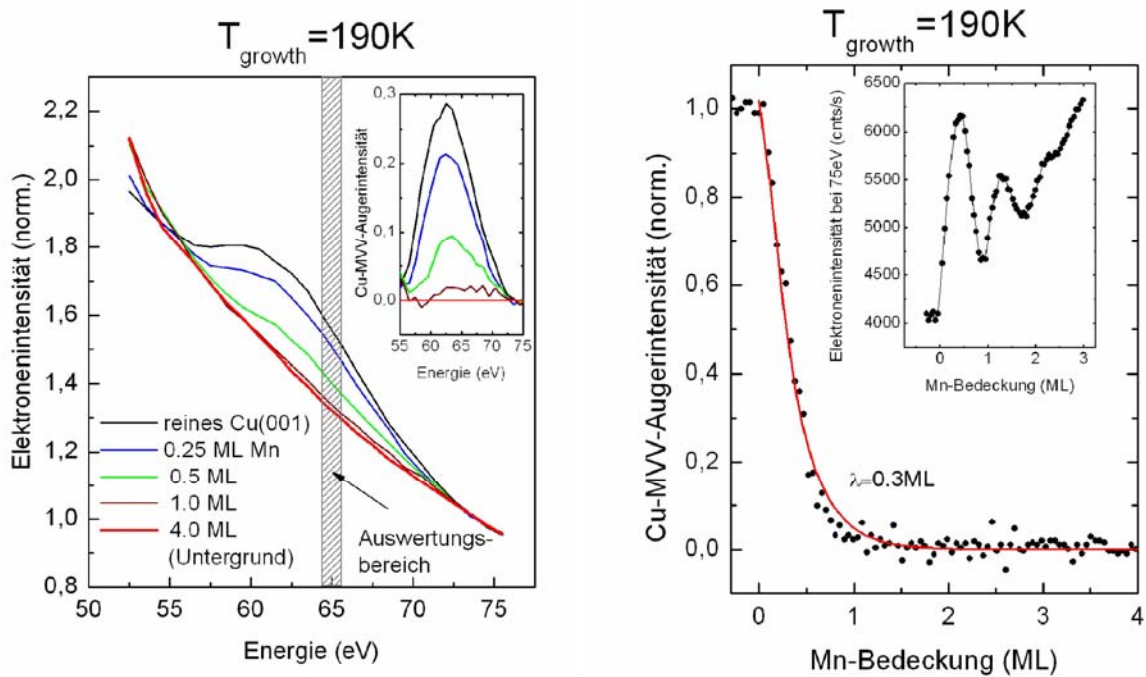


Abb. 7.17 links: Elektronenspektren im Energiebereich der Cu-MVV-Auger-Linie ($E=63 \text{ eV}$) angeregt durch streifend einfallende ($\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$) 25 keV-H^+ -Ionen auf Cu(001) bei zunehmender Mn-Bedeckung ($T_{\text{growth}}=190 \text{ K}$, $p=0.003 \text{ ML/s}$). Die Spektren wurden auf die Elektronenzählrate bei $E=75 \text{ eV}$ normiert. Die Aufnahme der Spektren erfolgte bei kontinuierlich laufender Mn-Deposition. Das Inset zeigt die Cu-MVV-Auger-Intensitäten nach Abzug des Sekundärelektronenuntergrundes (benutzt wurde dazu das $4.0 \text{ ML Mn/Cu(001)}$ -Spektrum). rechts: aus den Elektronenspektren (links) zu entnehmende Änderung der Cu-MVV-Augerintensität in Abhängigkeit von der Mn-Bedeckung. Nach Abzug des Sekundärelektronenuntergrundes wurde dazu die Auger-Intensitäten bei $E=65 \pm 2 \text{ eV}$ benutzt. Aus der besten Anpassung nach Gl.7.5 folgt eine Informationstiefe der Cu-Auger-Intensitäten von $\lambda=0.3 \text{ ML}$ (—) Das Inset zeigt die Änderung der absoluten Elektronenzählrate bei $E=75 \text{ eV}$. Zu erkennen sind die wachstumsinduzierten Emissionsoszillationen. Die Minima fallen mit dem Schließen der einzelnen Mn-Lagen zusammen. Dies ermöglicht eine direkte Zuordnung des Spektrums zur jeweiligen Mn-Bedeckung

Flanke der herauswachsenden Mn-Augerlinie bei 45 eV zu vermeiden, wurde der Auswertungsbereich des Cu-Augerpeaks auf 65 eV festgelegt. Abb. 7.17 rechts zeigt die exponentielle Abnahme der Cu-MVV-Peakhöhe in Abhängigkeit von der Mn-Bedeckung. Dabei kann aus den oszillierenden absoluten Zählraten der Einzelspektren auf die genaue Mn-Bedeckung geschlossen werden (siehe dazu Kap. 5). Das Inset von Abb. 7.17 rechts zeigt die wachstumsbedingte Änderung der absoluten Elektronenintensitätswerte bei $E=75 \text{ eV}$. Die Minima der beobachtbaren Emissionsoszillationen fallen mit geschlossenen Mn-Decklagen zusammen. Aus dem exponentiellen Abklingen der Cu-MVV-Augerintensität folgt nach Anpassung durch Gl. 7.5 eine Informationstiefe von $\lambda=(0.3 \pm 0.1) \text{ ML}$. Entsprechende Untersuchungen des protoneninduzierten Cu-MVV-Augersignals bei einer Wachstumstemperatur von $T_{\text{growth}}=420 \text{ K}$ zeigt Abb. 7.18. Hier wurden bei kontinuierlicher Aufnahme von protoneninduzierten Elektronenspektren 3.0 Monolagen Mn bei $T_{\text{growth}}=420 \text{ K}$ aufgewachsen. Anschließend wurde der Aufdampfprozess unterbrochen, um die Probe abzukühlen. Bei einer Wachstumstemperatur von $T_{\text{growth}}=190 \text{ K}$

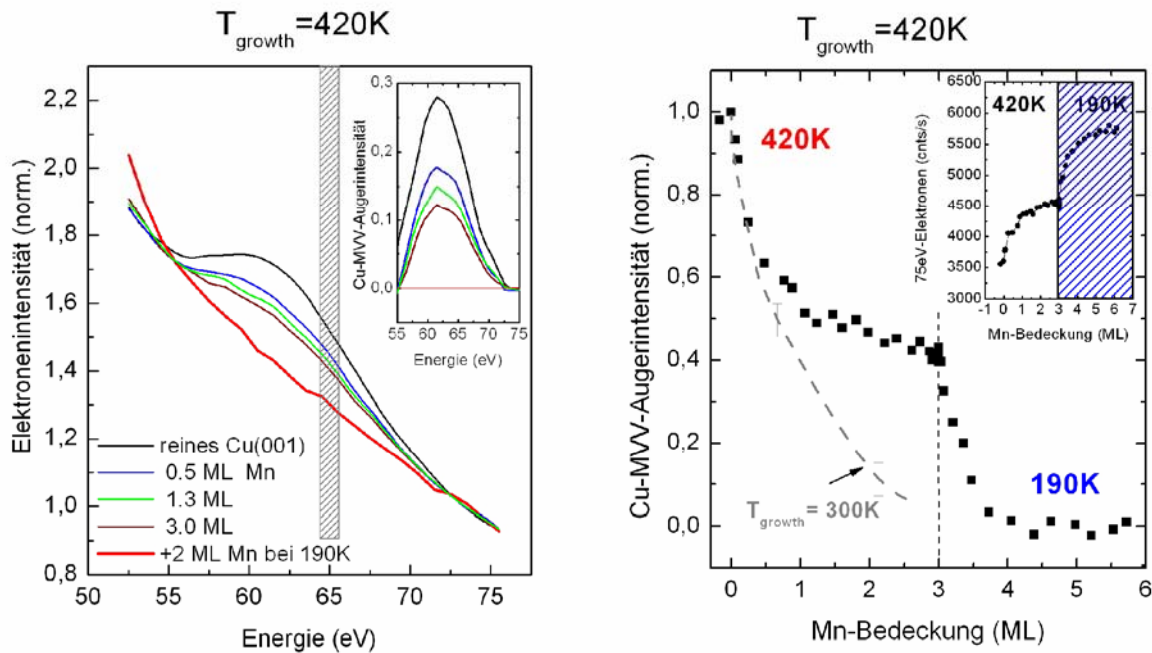


Abb. 7.18: links: wie Abb. 7.17 bei einer Wachstumstemperatur von $T_{\text{growth}} = 420 \pm 10\text{ K}$. Die Mn-Deposition wurde nach einer nominellen Bedeckung von 3.0 ML unterbrochen, um die Probe auf 190 K abzukühlen. Anschließend wurden weitere 3.0 ML Mn aufgedampft. Das Inset zeigt die bedeckungsabhängige Entwicklung der Cu-Auger-Peaks nach Abzug des Sekundärelektronenuntergrundes. Verwendet wurde dazu das Spektrum nach dem zusätzlichen Aufdampfen von 3.0 ML Mn bei $T_{\text{growth}} = 190\text{ K}$. rechts: Entwicklung der Cu-MVV-Augerintensität mit zunehmender Mn-Bedeckung ($T_{\text{growth}} = 420\text{ K}$). Bei $T_{\text{growth}} = 420\text{ K}$ sind selbst bei einer Bedeckung von 3.0 ML noch deutliche Cu-MVV-Auger-Intensitäten nachweisbar. Abkühlen der Probe und zusätzliche Mn-Deposition führen zur Auslöschung der Cu-Augerintensitäten. Im Vergleich dazu ist die bedeckungsabhängige Entwicklung der protoneninduzierten Cu-MVV-Augerintensität bei einer Wachstumstemperatur von $T_{\text{growth}} = 300\text{ K}$ eingezeichnet (-----)

erfolgte die abschließende Deposition weiterer 3.0 Monolagen. Im Unterschied zur Tieftemperaturmessung (Abb. 7.17) weisen die Elektronenspektren bei einer Wachstumstemperatur von 420 K selbst bei nominellen Bedeckungen von mehreren Mn-Monolagen noch deutliche Cu-Augerintensitäten auf, was auf eine Cu-Durchmischung der obersten Lagen hindeutet. Die anschließende Deposition von ca. einer Monolage bei 190 K führt wegen der in diesem Temperaturbereich unterdrückten Interlagenaustauschprozesse zum Verschwinden des Cu-MVV-Augersignals. Dementsprechend wurde auch hier als Untergrundsignal das Elektronenspektrum nach dem Aufdampfen der drei Monolagen bei $T_{\text{growth}} = 190\text{ K}$ verwendet (siehe Abb. 7.18 links). Aufgrund der geringen Informationstiefe des protoneninduzierten Augersignals trägt, geschlossene Legierungslagen vorausgesetzt, nur die oberste atomare Lage zum Augersignal bei. Ausgehend von Gl. 7.4 liegt der Signalbeitrag der Zwischenlage unter zwei Prozent und kann vernachlässigt werden. Dementsprechend folgt aus der relativen Änderung der Augerintensität in Abb. 7.18 rechts direkt der Cu-Oberflächenanteil in Abhängigkeit von der nominellen Mn-Bedeckung. Zum Vergleich zeigt Abb. 7.18 rechts den bedeckungsabhängigen Verlauf der protoneninduzierten Cu-MVV-Augerintensität bei $T_{\text{growth}} = 300\text{ K}$.

Bei 420 K und einer nominellen Mn-Bedeckung von einer Monolage liegt der Cu-Oberflächenanteil bei 52 ± 6 %. Da Volumendiffusion erst oberhalb von 470 K einsetzt, kann auf einen Cu-Anteil von 48 ± 6 % in der Zwischenlage geschlossen werden. Zusammen mit den in diesem Bedeckungsbereich (0.5 ML bis 1.0 ML) beobachtbaren $c(2 \times 2)$ -LEED-Reflexen, weist ein solcher Anteil an Cu-Atomen auf die Formierung von zwei $c(2 \times 2)$ -Legierungslagen hin. Im Bedeckungsbereich von 1.3 ML bis 2.2 ML, in dem die $p2gg(4 \times 2)$ -Phase beobachtet wird, liegt der Cu-Oberflächenanteil mit 46 ± 6 % nur leicht unter dem der $c(2 \times 2)$ -Legierungsphase. Eine signifikante Erhöhung der Mn-Konzentration zur Erklärung der in [PP05] beobachteten drastischen Zunahme der Oberflächenspannung in diesem Bedeckungsbereich kann durch die protoneninduzierten Augeruntersuchungen nicht bestätigt werden. Vielmehr zeigt sich eine zur $c(2 \times 2)$ -Legierung vergleichbare stöchiometrische Zusammensetzung der $p2gg(4 \times 2)$ -Oberflächenlegierung. Der bis zu einer nominellen Bedeckung von drei Mn-Monolagen (LEED: $p(1 \times 1)$ -Reflexe) kaum reduzierte Cu-Oberflächenanteil von 42 ± 6 % weist auf starke Interlagendiffusion auch bei Bedeckungen von mehr als 2.2 ML hin, für die keine langreichweitig geordnete Oberflächenlegierung mehr nachweisbar ist. Bei einer Wachstumstemperatur von $T_{\text{growth}} = 300$ K ist der Rückgang des Cu-MVV-Augersignals im Bedeckungsbereich bis 0.5 ML mit dem der 420 K Messung vergleichbar. Erst nach der Ausbildung der $c(2 \times 2)$ -Legierung bei Raumtemperatur, d.h. im Bedeckungsbereich von mehr als 0.5 Monolagen, zeigt die Cu-Augerintensität eine im Vergleich zum Wachstum bei 420 K stärkere Reduzierung der Cu-Oberflächenkonzentration. Nach einer nominellen Bedeckung von einer Monolage liegt dementsprechend der Cu-Anteil der obersten Lage mit 42 ± 6 % um ca. 10 % unter dem bei gleicher Bedeckung gemessenen Cu-Anteil bei $T_{\text{growth}} = 420$ K. Ursächlich für die leicht verringerte Cu-Konzentration könnte die in [KK95] mittels STM beobachtete Mn-Dekoration von Stufenkanten sein. Der bei einer Mn-Monolage nur geringfügig unter 50 % liegende Cu-Oberflächenanteil zusammen mit den in diesem Bedeckungsbereich auftretenden $c(2 \times 2)$ -LEED-Reflexen lässt auch bei 300 K auf die Ausbildung geordneter $c(2 \times 2)$ -Domänen schließen. Das bei Bedeckungen von mehr als einer Monolage einsetzende Inselwachstum ist mit einer deutlichen Reduzierung des Cu-Oberflächenanteils verbunden. Bei einer Bedeckung von 2.0 Monolagen liegt der Anteil an Cu an der Oberfläche bei ca. 15 %. Die auch in diesem Bedeckungsbereich noch schwach erkennbaren Überstrukturreflexe sind demnach den $c(2 \times 2)$ -rekonstruierten geschlossenen Zwischenlagen zuzuordnen. Zusammenfassend kann aus den protoneninduzierten Augermessungen auf die Ausbildung von zwei $c(2 \times 2)$ -rekonstruierten Legierungslagen sowohl bei Raumtemperatur als auch bei 420 K geschlossen werden. Die bei der Mn-Deposition bei 420 K bis zu einer Bedeckung von ca. 1.3 ML stetig ansteigende Oberflächenspannung ist nicht, wie in [PP05] vorgeschlagen, durch eine erhöhte Mn-Konzentration in der Oberflächenlage zu

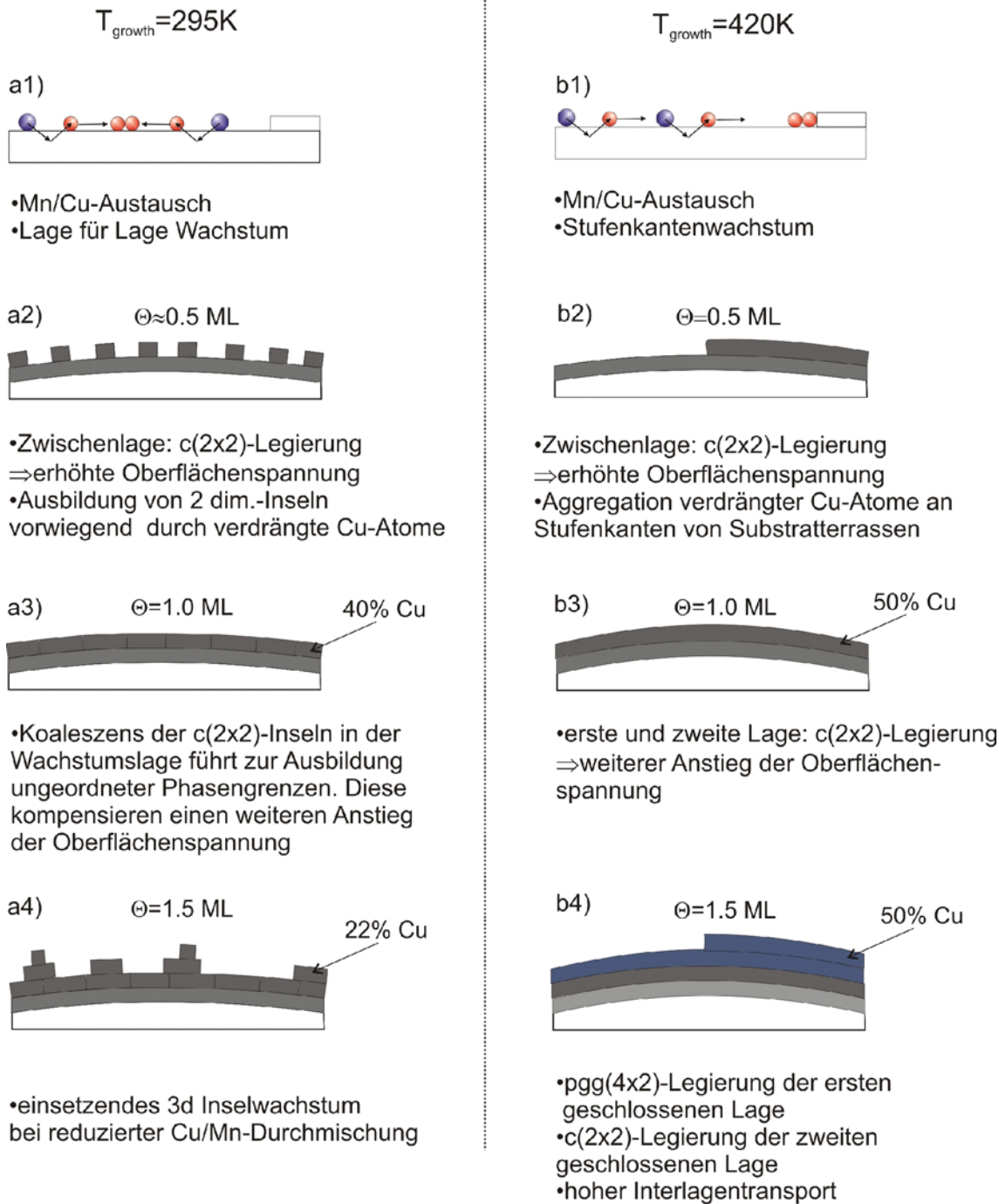


Abb. 7.19: Schematisches Modell für die wachstumstemperaturabhängige Ausbildung der MnCu Obeflächenlegierung.: Die Abbildungen links (a1)-(a4) und rechts (b1)-(b4) zeigen die strukturelle Entwicklung bei Wachstumstemperaturen von 300 K und 420 K. Sowohl bei 300 K als auch bei 420 K formieren sich zwei geschlossene c(2x2)-Legierungslagen. Die temperaturabhängigen Wachstumsregime (300 K: Lagenwachstum; 420 K: Stufenkantenwachstum) führen zu unterschiedlichen Oberflächenspannungen der doppelagigen c(2x2)-Legierungsfilme. Die höhere Oberflächenverspannung und die effektiven Interlagen-Cu/Mn-Austauschprozesse führen bei 420 K im Bedeckungsbereich von mehr als 1.2 ML zur Formierung der p2gg(4x2)-Legierung. Bei Raumtemperatur setzt in diesem Bedeckungsbereich hingegen dreidimensionales Inselwachstum ein.

erklären. Vielmehr zeigt sich in diesem Bedeckungsbereich ein zur c(2x2)-Phase vergleichbarer Cu-Oberflächenanteil von $50 \pm 6 \%$. Auch aus den Augermessungen bei Raumtemperatur folgt

keine direkte Proportionalität zwischen dem Mn-Anteil in der Oberflächenlage und der auftretenden Oberflächenspannung. So weist die bei Raumtemperatur präparierte Cu/Mn-Oberflächenlegierung (1.0 ML) mit einem Mn-Oberflächenanteil von ca. 60 % eine geringere Oberflächenspannung auf als ein bei 420 K präparierter Legierungsfilm mit einem um ca. 10 % geringeren Mn-Oberflächenanteil.

Trotzdem steht die im Vergleich zur Raumtemperaturphase doppelt so hohe kompressive Ver-
spannung der Filmoberfläche bei $T_{\text{growth}}=420$ K offensichtlich in ursächlichem Zusammenhang mit der Ausbildung der nur bei hohen Wachstumstemperaturen beobachtbaren $p2gg(4 \times 2)$ -Phase. Es bleibt allerdings die Frage offen, wie ein so deutlicher Unterschied in der Oberflächenspannung zu erklären ist, obwohl, wie gezeigt, sich in beiden Temperaturregimen zwei geschlossene $c(2 \times 2)$ -Legierungslagen mit vergleichbarer stöchiometrischer Zusammensetzung ausbilden?

Eine mögliche Erklärung für die von der Wachstumstemperatur abhängige Änderung der Oberflächenspannung verbunden mit der Entstehung der $p2gg(4 \times 2)$ -Rekonstruktion im Hochtemperaturregime zeigt schematisch Abb. 7.19. Im Gegensatz zum Stufenkantenwachstum bei 420 K vollzieht sich die Formierung der $c(2 \times 2)$ -Raumtemperaturphase, wie in [KK95] gezeigt, durch Lagenwachstumsprozesse (Abb. 7.19 a1), d.h. nach dem massiven Einbau von Mn-Atomen in die Cu(001)-Terrassen im Bedeckungsbereich bis 0.5 ML nukleieren in der Wachstumslage Cu/Mn-durchmischte Inseln (Abb. 7.19 a2). Auch diese weisen eine geordnete $c(2 \times 2)$ -Struktur auf, so dass nach der Koaleszens dieser Inseln eine zweite geschlossene $c(2 \times 2)$ -Lage entsteht (Abb. 7.19 a3). Die mittlere laterale Ausdehnung dieser quadratischen $c(2 \times 2)$ -Inseln liegt im Bereich des Nukleationsabstandes, d.h. nach Abb. 7.2 rechts bei ca. 140 Å. Wie in Abb. 7.16 zu erkennen ist, treten in der Nähe zusammenwachsender $c(2 \times 2)$ -Inseln ungeordnete Phasenübergänge auf. Diese Phasengrenzen koaleszierender $c(2 \times 2)$ -Inseln könnten zur Relaxation des bei Raumtemperatur präparierten zweilagigen $c(2 \times 2)$ -Legierungsfilmes beitragen, einhergehend mit einer verringerten Änderung der Oberflächenspannung. Bei Bedeckungen von mehr als einer Monolage setzt zunehmend dreidimensionales Mn-Inselwachstum ein (Abb. 7.19 a4). Mn/Cu-Austausch und Interlagendiffusion sind weitgehend unterdrückt.

Das Wachstum bei erhöhten Substrattemperaturen vollzieht sich durch Anlagerung von verdrängten Cu und adsorbierten Mn-Atomen an Substratterrassenkanten (Abb. 7.19 b1). Die laterale Ausdehnung der sich ausbildenden langreichweitig geordneten $c(2 \times 2)$ -Regionen liegt hier im Bereich der Terrassenbreite des Substrates, d.h. bei ca. 800-1000 Å. Eine mögliche Kompensation der Oberflächenspannung durch ungeordnete Phasengrenzen ist demnach in diesem Wachstumsregime von weitaus geringerer Bedeutung, was eine Zunahme der kompressiven Oberflächenspannung bei $T_{\text{growth}}=420$ K im Bedeckungsbereich von 0.5 ML bis 1.0 ML nach

sich ziehen würde (Abb. 7.19 b2 und b3). Bei fortschreitender Mn-Deposition führt die im Vergleich zur Raumtemperaturphase stärkere kompressive Verspannung des doppelagigen $c(2 \times 2)$ -Legierungsfilmes im Zusammenwirken mit effizienter Mn/Cu-Interlagendiffusion zur $p2gg(4 \times 2)$ -Rekonstruktion der ersten geschlossenen Legierungslage bei $T_{\text{growth}}=430$ K (Abb. 7.19 b4).

Dem in [PP05] vorgeschlagenen Szenario folgend, liegt die Ursache für die Formierung der metastabilen $\text{Cu}(001)p2gg(4 \times 2)\text{Mn}$ -Legierungsphase in einer, im Vergleich zur energetisch stabilen $c(2 \times 2)$ -Phase, deutlich höheren kompressiven Oberflächenspannung. Aus der stärkeren kompressiven Verspannung des $p2gg(4 \times 2)$ -Legierungsfilmes wurde in [PP05] auf eine erhöhte Mn-Konzentration ($C_{\text{Mn}} > 50$ %) in der obersten Legierungslage geschlossen, einhergehend mit einer Mn-Verarmung der Zwischenlage. In diesem Kontext wurde hier mittels protoneninduzierter Augerspektroskopie der bedeckungsabhängige Cu-Oberflächenanteil der $p2gg(4 \times 2)$ -Phase und der $c(2 \times 2)$ -Phase bei unterschiedlichen Wachstumstemperaturen untersucht.

Die Messungen an der $p2gg(4 \times 2)$ -Phase zeigen einen zur $c(2 \times 2)$ -Legierung vergleichbar hohen Cu-Anteil der obersten Legierungslage von 50 ± 6 %. Grund für die erhöhte Oberflächenspannung ist demzufolge nicht, wie in [PP05] angenommen, die stöchiometrische Zusammensetzung der $p2gg(4 \times 2)$ -Phase. Auf der Basis der protoneninduzierten Augeranalysen wurde ein zu [PP05] alternatives Szenario für die Formierung der $p2gg(4 \times 2)$ -Struktur aufgestellt.

7.7 Struktur der Cu(001)p2gg(4x2)Mn-Legierungsphase

Analog zu den Untersuchungen der Mn/Cu(001)-Tiefemperaturphasen wurden auch hier IST- und qualitative LEED-Analysen zur Bestimmung der atomaren Struktur der p2gg(4x2)-CuMn

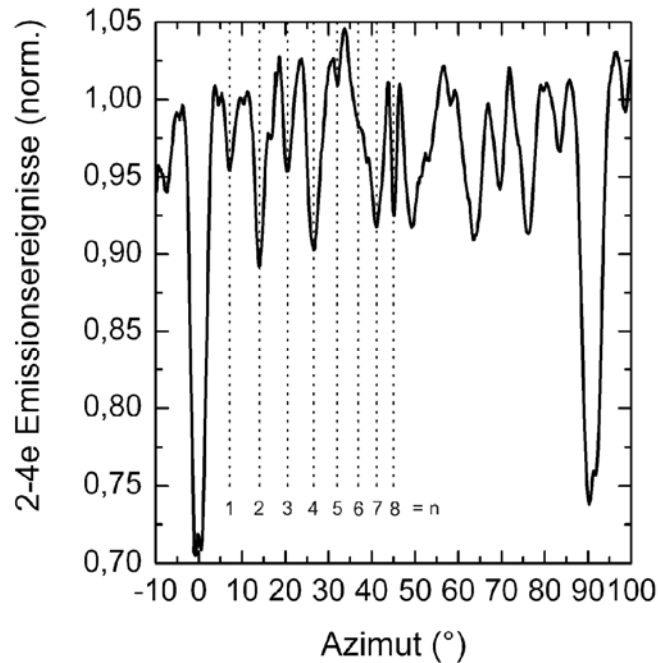


Abb. 7.20: Anzahl von 2-4e Emissionssereignissen in Abhängigkeit vom azimutalen Einfallswinkel (IST-Kurve) während der streifenden Streuung ($\phi_{in}=1.6^\circ$) von H^0 -Projektilen auf 1.5 ML Mn/Cu(001) ($T_{growth}=420\pm 10$ K, $p=0.008$ ML/s). Die Winkellagen der an der p2gg(4x2)-CuMn Oberflächenlegierung auftretenden atomaren Kanäle entsprechen $\theta=\arctan(n/8)$. Die Kurve wurde auf die mittlere Emissionsanzahl bei zufälligem azimutalen Einfall normiert.

Legierung herangezogen. Abb. 7.20 zeigt eine IST-Messung nach der Deposition von 1.5 ML Mn auf Cu(001) bei einer Wachstumstemperatur von 420 K. Unmittelbar vor den IST-Messungen durchgeführte LEED-Untersuchungen zeigen die aus der Literatur [GP93] bekannten (4x2)-Überstrukturereflexe (siehe Abb. 7.22). Aus der Auslöschung der halbzahligen LEED-Reflexe auf der $m=0$ bzw. $n=0$ Achse folgt die Existenz von Gleitspiegelebenen entlang der $[10]_{sc}$ bzw. $[01]_{sc}$ -Kristallrichtungen. Im Vergleich zu einer einfach quadratischen Atomanordnung, wie sie in der p(1x1)Cu(001)-Substratoberfläche oder in der c(2x2)-Legierungsphase vorliegt (vgl. Abb. 7.11), weist die IST-Messung der p2gg(4x2)-Legierung einen deutlich veränderten Kurvenverlauf auf, was auf starke laterale Verrückungen der Atompositionen schließen lässt. Sowohl die, trotz defektarmer Filmoberfläche, generell verringerten Signalhöhen (y-Achse in Abb. 7.20 wurde gestreckt) als auch die erhöhte Anzahl gleichrangiger Kanäle deuten auf eine komplexe Rekonstruktion der Oberflächenlage hin, die keine einfach quadratische oder hexagonale Grundstruktur aufweist. Aus der bezüglich der ausgezeichneten $[10]$ bzw.

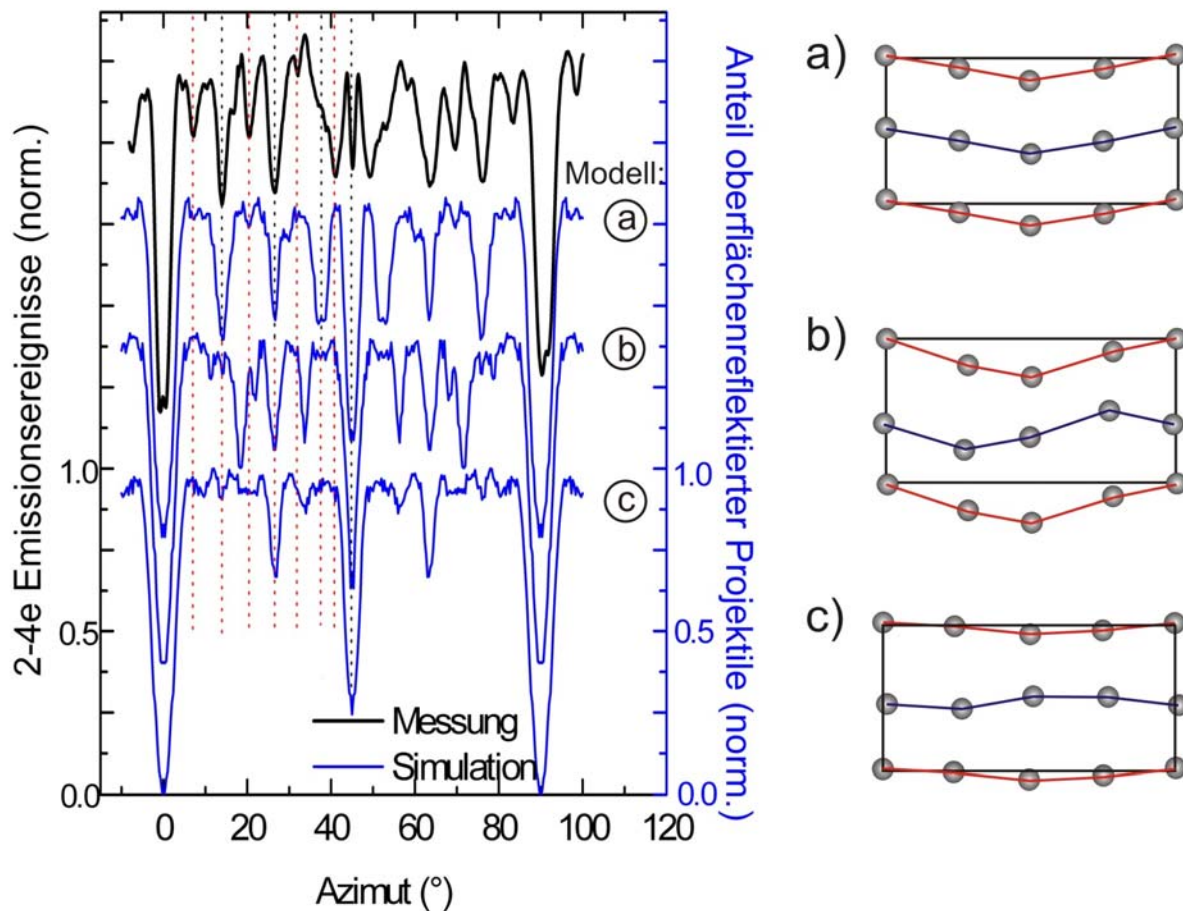


Abb. 7.21: links: Vergleich zwischen der experimentellen IST-Kurve (wie Abb. 7.20, schwarz) und IST-Simulationen (blau) zu den aus der Literatur bekannten Strukturmodellen (siehe rechte Seite) der Cu(001)p2gg(4x2)Mn-Legierungsphase. Für die Simulation wurde ein reduziertes Molierpotential ($a=0.18$ a.u.) und Debyetemperaturen von $\Theta_{D\perp}=172$ K, $\Theta_{D\parallel}=202$ K bei einer Targettemperatur von $T=420$ K verwendet. In der Simulation wurden in allen Fällen vier Domänenorientierungen der gezeigten Einheitszellen mitberücksichtigt. Alle Kurven wurden auf die Signalthöhe des $[10]_{sc}$ -Kanals normiert und zur besseren Anschaulichkeit entlang der y-Achse verschoben. rechts: Gezeigt sind die zu den simulierten IST-Kurven gehörenden veröffentlichten Strukturvorschläge für die Cu(001)p2gg(4x2)Mn-Legierungsphase. Modell (a) aus [FH92] erstellt mittels I/V-LEED-Analyse; Modell (b) aus [KK95] mittels kombinierter STM und LEED-Analyse; Modell (c) aus [PP05] mittels SXRD-Analyse.

[01]-Richtungen vorliegenden vierfachen Dreh- und Spiegelsymmetrie der quadratischen Substratunterlage folgt die Ausbildung von maximal vier Domänenorientierungen der Adsorbatstruktur. Die aus den IST-Kurven zu entnehmenden Richtungen dichtgepackter Atomreihen der p2gg(4x2)-Struktur erfüllen diese Symmetriebedingungen, zu erkennen an dem zu $\theta=0^\circ$, 45° und 90° spiegelsymmetrischen Kurvenverlauf. Generell müssen zur Bestimmung der Struktur demnach die Signalbeiträge von insgesamt vier Domänenorientierungen mitberücksichtigt werden. Alle Winkellagen der in der p2gg(4x2)-Struktur auftretenden Kanäle können in guter Näherung über $\theta=\arctan(n/8)$ berechnet werden (gestrichelte Linien in Abb. 7.20). Die Hauptrichtungen liegen bei $\theta=0.0^\circ$, 14.0° , 26.6° und 41.2° , bei einer Messgenauigkeit von $\pm 0.5^\circ$. Im

ersten Schritt der Auswertung wurde die IST-Messung mit den simulierten IST-Kurven bestehender Strukturmodelle der (4x2)-CuMn-Legierungsphase verglichen. Flores *et al.* [FH92] entwickelte auf der Basis von I/V-LEED-Analysen den in Abb. 7.21 Modell (a) gezeigten

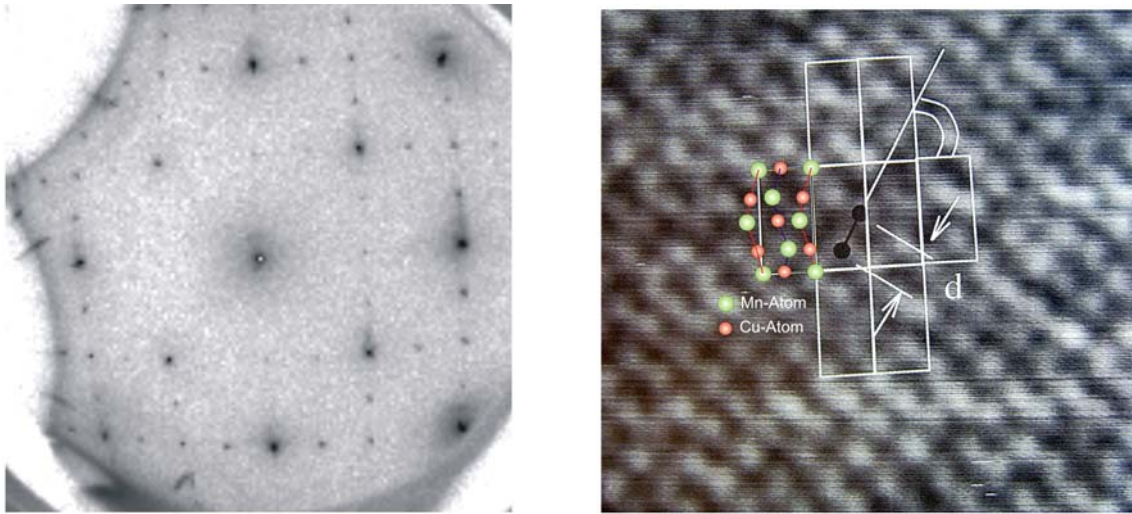


Abb. 7.22 links: unmittelbar vor der IST-Messung (Abb. 7.20) aufgenommenes LEED-Bild (1.5 ML Mn auf Cu(001) bei $T_{\text{growth}}=420$ K). Zu erkennen sind die aus der Literatur (z.B.: [FH92], [PP05]) bekannten Überstrukturspots einer (4x2)-Einheitszelle mit systematischer Auslöschung der halbzahligen Beugungsreflexe. rechts: STM-Aufnahme nach der Deposition von 1.5 ML Mn auf Cu(001) bei 420 K aus [KK95]. Eingezeichnet ist die aus diesen STM-Untersuchungen geschlussfolgerte p2gg(4x2)-Atomanordnung (Modell (b) in Abb. 7.21). In den STM-Untersuchungen konnten nur vier von acht Atomen der Einheitszelle nachgewiesen werden (helle konzentrische Bereiche) diese wurden Mn-Atomen zugeordnet.

Strukturvorschlag einer p2mg(4x2)-Einheitszelle. Die in den Folgejahren von Kraan *et al.* [KK95] durchgeführte LEED und STM-Untersuchung konnte dieses Modell nicht bestätigen. Allerdings sind analog zu den atomar aufgelösten STM-Aufnahmen der c(2x2)-Legierungsphase auch bei der (4x2)-Phase nur die Hälfte der in der Einheitszelle vorhandenen Atome nachweisbar (Abb. 7.22 rechts). Dementsprechend wurde in [KK95] auf eine zur c(2x2)-Legierung adäquate schachbrettartige Verteilung der Cu-Atome innerhalb der (4x2)-Einheitszelle geschlossen. Das auf der Grundlage dieser Analysen präferierte Atomarrangement einer p2gg(4x2)-Einheitszelle zeigt Abb. 7.21 im Modell (b).

Aktuelle Analysen von Oberflächenröntgenbeugungsspektren (SXRD) der (4x2)-CuMn-Phase [PP05] führen zu einem zu Modell (b) ähnlichen Strukturvorschlag, allerdings mit insgesamt geringeren transversalen Auslenkungen der in der p2gg(4x2)-Einheitszelle vorhandenen Atome (Abb. 7.21 Modell (c)). Weiterhin wird in [PP05] auf einen Mn-Oberflächenanteil von weit mehr als 50 % geschlossen, was eine schachbrettartige Verteilung der an der Oberflächenlegierung beteiligten Cu-Atome ausschließt. Die zu den einzelnen Strukturvorschlägen simulierten IST-Kurven sind in Abb. 7.21 links blau dargestellt. Die Projektiltrajektorien sind aufgrund der ähnlichen Kernladungszahlen von Cu und Mn in guter Näherung unabhängig von der genauen

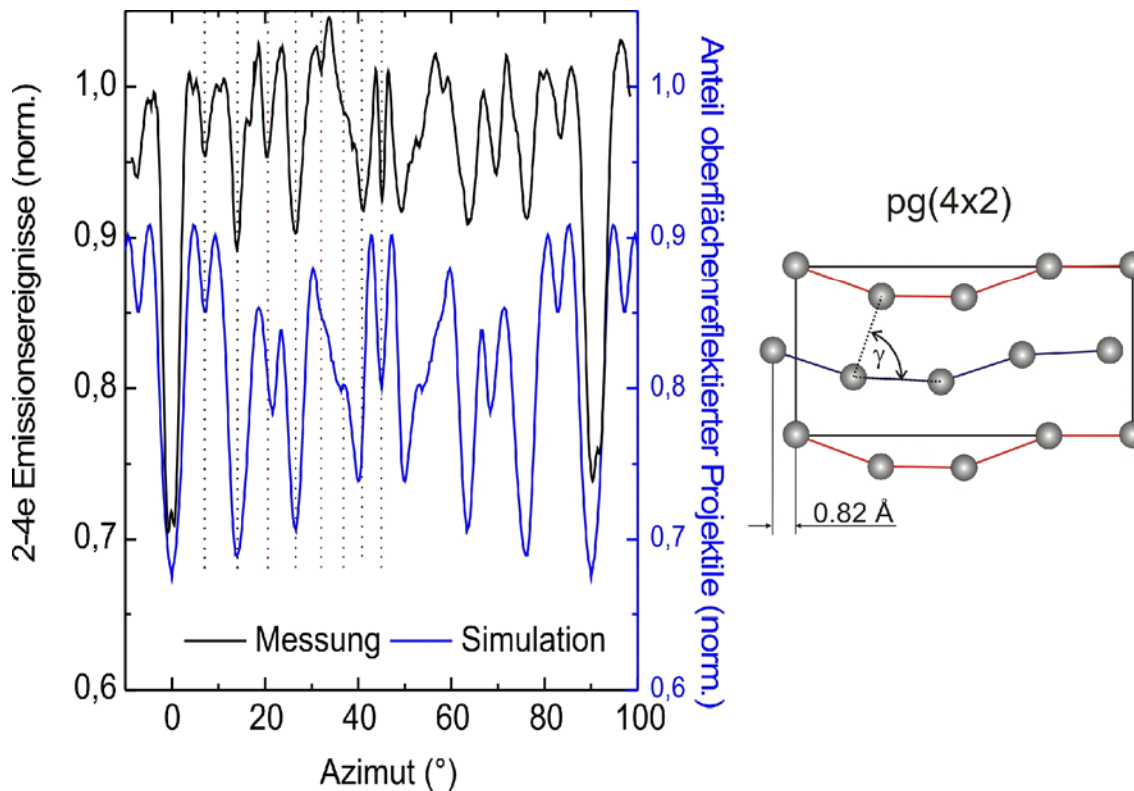


Abb. 7.23: Experimentelle IST-Kurve an 1.5 ML Mn auf Cu(001) bei $T_{\text{growth}}=420$ K (schwarz) und IST-Simulation zur rechts dargestellten pg(4x2)-Einheitszelle (blau), weiteres wie in Abb. 7.21. Die simulierte IST-Kurve setzt sich aus den Signalbeiträgen von vier Domänenorientierungen der pg(4x2)-Struktur zusammen (siehe auch Abb. 7.23). Die Winkellagen und die Rangfolge der Signalthöhen stimmen in guter Näherung mit der Messkurve überein. Das aus den IST-Messungen folgende pg(4x2)-Modell weist im Gegensatz zu den Modellen (a)-(c) keine zweizähligen Drehachsen auf. Eingezeichnet ist der Rauten-Innenwinkel γ und die signifikante Verschiebung der mittleren Atomreihe um 0.82 Å.

stöchiometrischen Zusammensetzung der obersten atomaren Lage. Dementsprechend wurde in der Berechnung des an der Oberfläche reflektierten Projektionsanteils eine gemittelte Kernladungszahl von $Z=27$ für alle Atome der obersten Lage verwendet. Die für die Modelle charakteristischen geometrischen Winkellagen und Öffnungsbreiten der Atomkanäle führen zu deutlichen Änderungen in den Simulationskurven, was prinzipiell eine Unterscheidung der einzelnen Strukturvorschläge mittels IST ermöglicht (Abb. 7.21 links). Allerdings steht keines der vorgeschlagenen Modelle in ausreichender Übereinstimmung mit den aus der Messung (schwarze Kurve in Abb. 7.21) zu schließenden azimuthalen Winkelpositionen und effektiven Kanalbreiten der (4x2)-Legierungsphase. Insbesondere die aktuelleren Strukturmodelle (b) und (c) stehen in völliger Diskrepanz zur IST-Messung. In diesen Modellen fehlen die in der Messung auftretenden prominenten Kanäle bei $\theta=7.1^\circ$, 14.0° , 20.6° , 37.0° und 41.2° . Folgerichtig können diese Strukturvorschläge weitgehend ausgeschlossen werden.

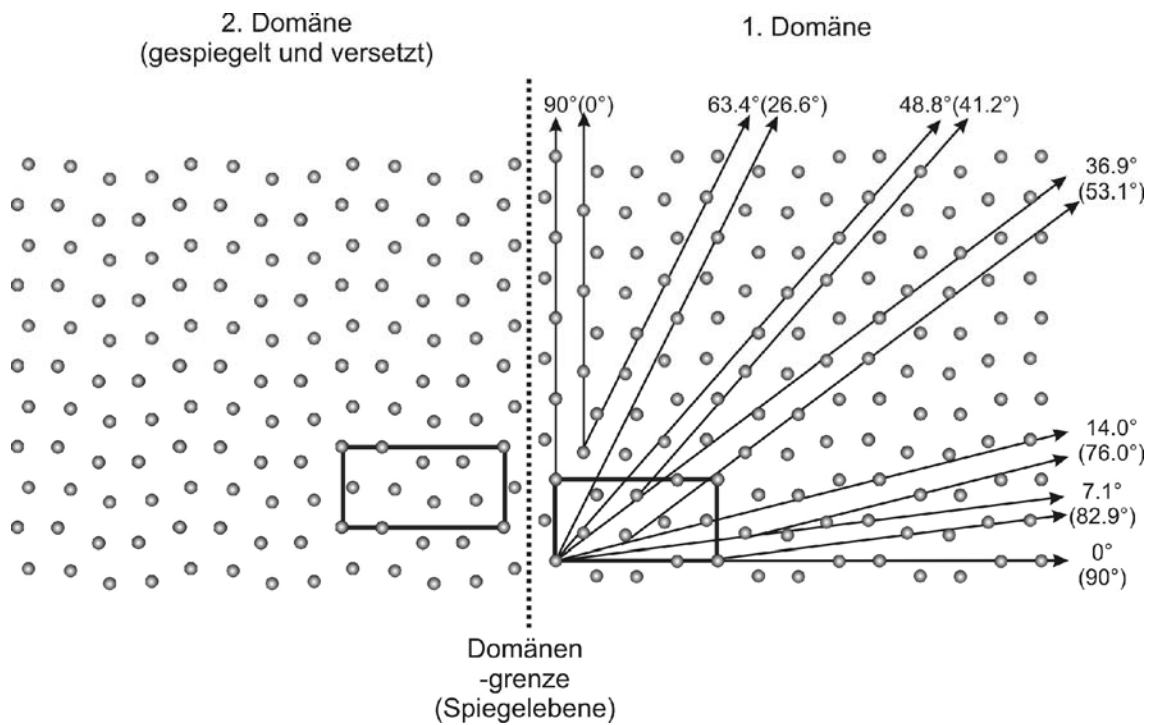


Abb. 7.24: Zwei von insgesamt vier mit zu berücksichtigenden Domänen des pg(4x2)-Strukturmodells. Die hier gezeigte 2. Domäne entsteht durch Spiegelung der 1. Domäne an der entlang der $[01]_{sc}$ -Richtung verlaufenden Domänengrenze. Anschließendes Verschieben der 2. Domäne um die halbe Höhe der Einheitszelle ($a=2.56 \text{ \AA}$) entlang der Domänengrenze (Gleitspiegeloperation) führt zu einem stressfreien Aneinandergrenzen beider Domänen. Die 3. und 4. Domäne ergeben sich aus der Drehung der gezeigten Domänen um 90° . In die 1. Domäne wurden die zu den Signalen der Messkurve gehörenden Kanäle eingezeichnet

Größere Ähnlichkeit mit der Messkurve weist die Simulation zu Modell (a) auf. So kann das Auftreten von Hauptkanälen bei $\theta=14.0^\circ$, 26.5° , 37.0° und 45.0° durch das Modell nachvollzogen werden. Allerdings fehlen auch hier die in der Messung auftretenden Kanäle bei $\theta=7.1^\circ$, 20.6° und 41.2° . Das für die Anpassung notwendige Öffnen eines Hauptkanals bei $\theta=41.2^\circ$ erfordert weitreichende Änderungen des atomaren Arrangements innerhalb der (4x2)-Einheitszelle. Dementsprechend kann über IST auch Strukturvorschlag (a) nicht bestätigt werden. Zum Auffinden von Strukturmodellen, die zu einer besseren Anpassung an die IST-Messung führen, wurde ein MATLAB-basiertes Programm (istGUI v2) von J. Seifert verwendet. Dieses Programm berechnet und visualisiert die Winkellagen und geometrischen Breiten der in einem größeren Atomcluster ($50 \times 50 \text{ \AA}^2$) auftretenden Kanäle unter Berücksichtigung aller auftretenden Domänenorientierungen. Im Gegensatz zur vollständigen Trajektorien-simulation erfolgt diese rein geometrische Berechnung in Echtzeit, so dass innerhalb von Minuten eine Vielzahl unterschiedlicher Strukturmodelle überprüft werden können. Weist eine Struktur die experimentellen Haupt- und Nebkanäle auf, so erfolgt über die Trajektorien-simulation eine Quantifizierung des an der Oberfläche reflektierten Projektilanteils, der letztendlich mit der IST-Messung verglichen wird. Das auf diese Weise an die experimentellen IST-Daten angepasste Strukturmodell zeigt Abb. 7.23. Obwohl die Existenz einer weiteren Atomanordnung, die

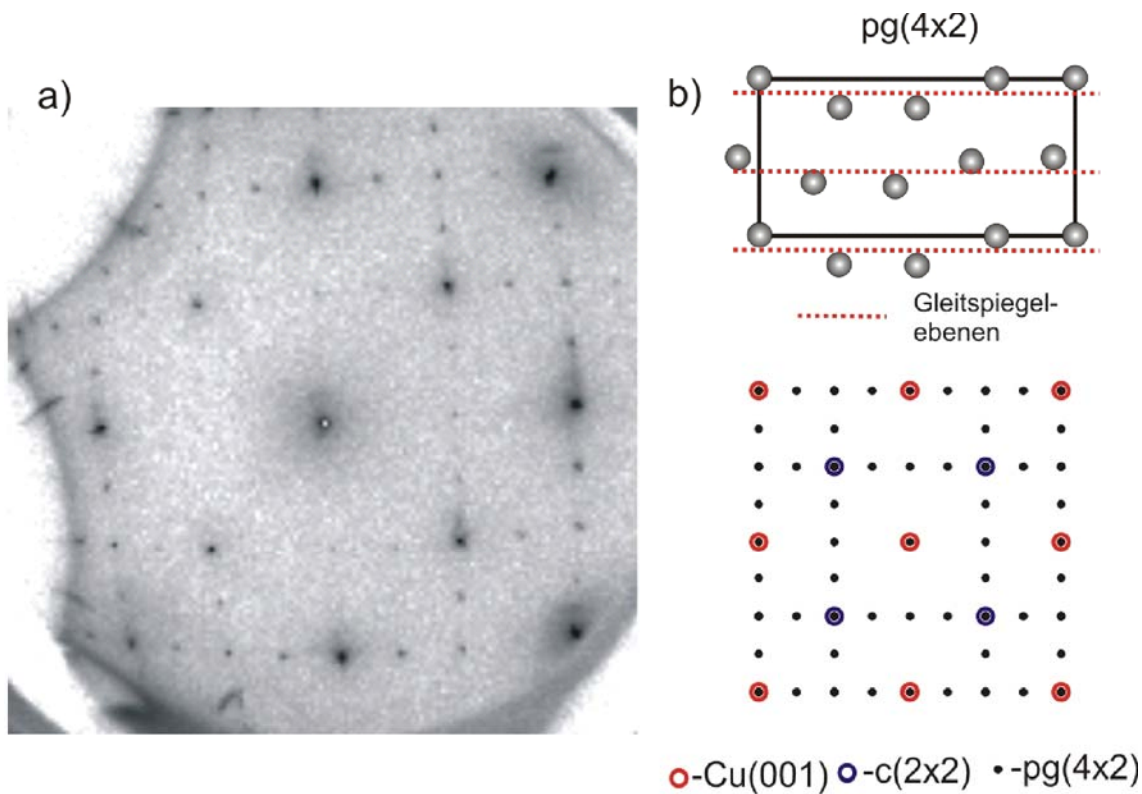


Abb. 7.25: Vergleich der gemessenen LEED-Reflexpositionen (1.5 ML Mn/Cu(001) bei 420 K, (a)) mit den zu erwartenden Beugungsreflexen der pg(4x2)-Einheitszelle (b unten). Zur Bestimmung der theor. Reflexpositionen wurde das LEEDpat-Programm vers.1.1 verwendet. Die für die Auslöschung der halbzahligen Reflexe notwendigen Gleitspiegelebenen weist das IST-Strukturmodell auf (eingezeichnet in b oben). Die aus den Symmetriebedingungen des pg(4x2)-Strukturmodells ableitbaren Positionen der Beugungsreflexe stimmen mit dem gemessenen LEED-Bild überein

identische Winkellagen und Kanalbreiten aufweist, nicht auszuschließen ist, scheint die Wahrscheinlichkeit für einen solchen Fall sehr gering, nicht zuletzt wegen der Vielzahl experimentell nachgewiesener Peaks und der in der Simulation notwendigen Überlagerung von vier unterschiedlich orientierten Domänen.

Ein signifikanter Unterschied zu den aus der Literatur bekannten Strukturmodellen ist die Versetzung benachbarter [10]-Atomketten um $\Delta s = 0.82 \text{ \AA}$ (siehe Abb. 7.23). Charakteristisch für diese Versetzung ist das Öffnen der [87]-Kanalrichtung bei $\theta = 48.8^\circ$ (41.2°). Der Kurvenverlauf der IST-Messung kann in guter Näherung von der simulierten IST-Kurve nachvollzogen werden. So stimmen Winkellagen und relative Signalhöhen weitgehend aller auftretenden Haupt- und Nebenchannels des Modells mit der Messkurve überein. Geringfügige Abweichungen der azimuthalen Winkelposition des [38]-Kanals (exp.: $20.8^\circ \pm 0.5^\circ$; theo.: 21.8°) sowie des Kurvenverlaufes im Bereich des [58]-Kanals bei $\theta = 32.0^\circ$ können, ausgehend von den Atompositionen des IST-Strukturmodells, durch laterale Verrückungen der Atome im Bereich von weniger als $\Delta x = \Delta y = \pm 0.1 \text{ \AA}$ verringert werden. Allerdings erfordert eine solche nur durch Trajektorien-simulation realisierbare Feinanpassung einen erheblichen Zeitaufwand und führt zu keiner nennens-

werten Änderung des Strukturmodells. Zum jetzigen Zeitpunkt wurde auf eine solche Anpassungsprozedur verzichtet. Aus dem IST-Strukturmodell folgt für die $pg(4 \times 2)$ -CuMn-Oberflächenlegierungsphase ein mittlerer Bindungswinkel von $\bar{\gamma} \approx 71.0^\circ$. Demzufolge entspricht die mikroskopische Atomanordnung der (4×2) -Hochtemperaturlegierung einer quasi-hexagonalen Strukturphase, im Unterschied zur rein quadratischen $c(2 \times 2)$ -CuMn-Oberflächenlegierung. Der mittlere Bindungsabstand entlang der dicht gepackten $[10]_{sc}$ bzw. $[01]_{sc}$ -Richtung variiert zwischen 2.53 Å und 2.76 Å und liegt damit deutlich unter den Bindungsabständen der hexagonalen Tieftemperaturphasen.

Im Gegensatz zu den aus der Literatur bekannten $p2gg$ bzw. $p2mg$ Strukturvorschlägen weist die aus der IST-Messung folgende Einheitszelle keine zweizähligen Drehsymmetrieachsen auf. Allerdings enthält die Struktur insgesamt drei Gleitspiegelebenen entlang der $[10]_{sc}$ -Gitterrichtung (rot gestrichelte Linien in Abb. 7.25 b), so dass das Modell der $pg(4 \times 2)$ -Ebenengruppe angehört. Die aus den LEED-Analysen zu schließenden Gleitspiegelebenen entlang der $[10]_{sc}$ und $[01]_{sc}$ -Richtung ergeben sich bei der $pg(4 \times 2)$ -Phase aus der Berücksichtigung der vorhandenen Domänenorientierungen. Abb. 7.24 zeigt zwei der insgesamt vier $pg(4 \times 2)$ -Domänen. Die zweite Domäne wird durch eine Gleitspiegeloperation der ersten Domäne an der entlang der $[01]_{sc}$ -Richtung verlaufenden Domänengrenze erzeugt. Diese Symmetrioperation gewährleistet ein stressfreies Aneinandergrenzen beider Domänen. Die dritte und vierte Domäne ergibt sich aus der Drehung der gezeigten Domänen um 90° . Die unter Berücksichtigung der Domänen berechenbaren LEED-Reflexpositionen der $pg(4 \times 2)$ -Struktur (benutzt wurde das LEEDpat-Programm vers1.1. von K. Hermann) stimmen mit den experimentellen Elektronenbeugungsbild der Hochtemperatur-Mn-Phase überein (Abb. 7.25).

Aus den protoneninduzierten Augeranalysen folgt für die $pg(4 \times 2)$ -Phase, wie in Kapitel 7.6 gezeigt, ein Cu-Oberflächenanteil von ca. 50 %. In Analogie zur $c(2 \times 2)$ -Legierung bietet sich für die Cu-Atome demnach eine schachbrettartige Verteilung innerhalb der $pg(4 \times 2)$ -Einheitszelle an. Gestützt wird diese Annahme durch einen Vergleich der $pg(4 \times 2)$ -Atompositionen mit den atomar aufgelösten STM-Bildern aus [KK95]. Da in den STM-Aufnahmen aufgrund der elektronischen Struktur nur eine der beiden an der Oberfläche befindlichen Atomspezies nachweisbar ist, ermöglicht ein solcher Vergleich die Identifizierung von Cu bzw. Mn-Adsorptionsplätzen. Abb. 7.26 zeigt einen Ausschnitt des in [KK95] veröffentlichten und in Abb. 7.22 dargestellten STM-Bildes. In die Rastertunnelmikroskopaufnahme wurde die über IST gefundene $pg(4 \times 2)$ -Einheitszelle eingezeichnet. Unter der Annahme einer schachbrettartigen Verteilung der Cu bzw. Mn-Atome fallen die nachweisbaren Adsorptionsplätze (helle Bereiche) mit den Atompositionen einer Spezies der $pg(4 \times 2)$ -Einheitszelle zusammen

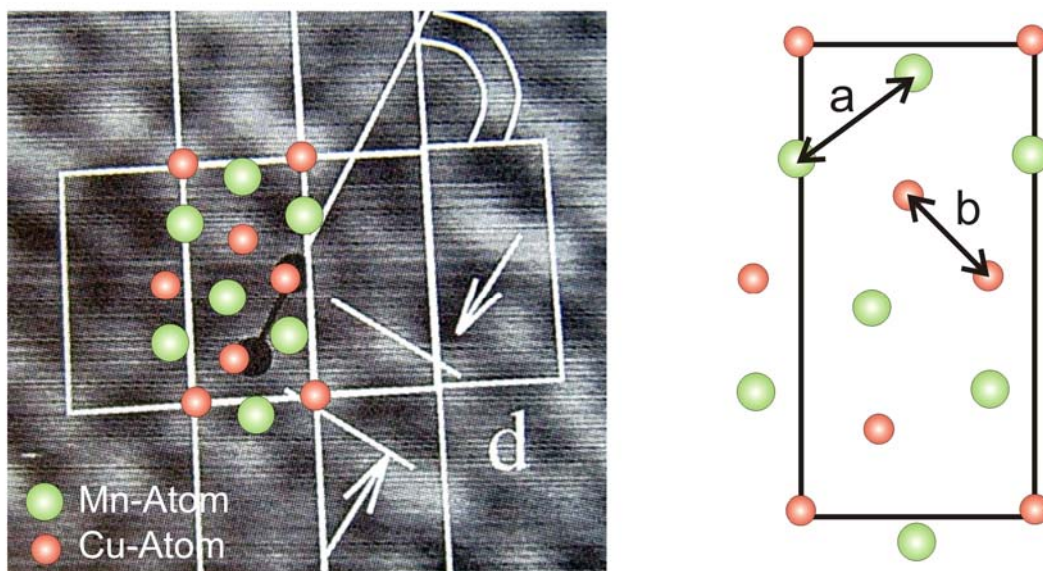


Abb. 7.26 links: $25 \times 25 \text{ \AA}^2$ Ausschnitt der in Abb. 7.22) gezeigten STM-Aufnahme aus [KK95], eingezeichnet wurde die aus den IST-Messungen folgende $pg(4 \times 2)$ -Einheitszelle. Die hellen Bereiche der aus dem STM-Bild folgenden Einheitszelle fallen systematisch mit Atompositionen des $pg(4 \times 2)$ -Strukturvorschlages zusammen. Diese werden unter Hinweis auf [WH00] Cu-Atomen zugeschrieben. Die daraus folgende schachbrettartige Verteilung der Cu bzw. Mn-Atome innerhalb der $pg(4 \times 2)$ -Einheitszelle zeigt die rechte Seite der Abbildung. Eingezeichnet sind die aus dieser Zuordnung folgenden interatomaren Cu-Cu (b) bzw. Mn-Mn (a) Minimalabstände

(rot dargestellte Atome in Abb. 7.26). In [KK95] wurden den hellen Bereichen des STM-Bildes Mn-Atome zugeordnet (siehe auch Abb. 7.22 rechts). Auf der Basis theoriegestützter STM-Untersuchungen an der $c(2 \times 2)$ -CuMn-Oberflächenlegierung [WH00] konnte allerdings gezeigt werden, dass aufgrund der elektronischen Struktur die hellen Bereiche eher Cu-Atomen als Mn-Atomen zuzuordnen sind. Dementsprechend besetzen Cu-Atome die Ecken der in Abb. 7.26 rechts dargestellten $pg(4 \times 2)$ -Einheitszelle. Die restlichen Cu-Bindungsplätze ergeben sich durch die schachbrettartige Verteilung. Unter dem Aspekt der aus dem $pg(4 \times 2)$ -Strukturmodell folgenden Abstände benachbarter Atome erscheint die von [WH00] vorgeschlagene Reinterpretation der STM-Bilder ebenfalls plausibel. So liegt der in dem Strukturvorschlag auftretende minimale interatomare Abstand bei $b = 2.47 \pm 0.1 \text{ \AA}$ (siehe Abb. 7.25 rechts). Ein Wert der deutlich unter den typischen Mn-Mn- bzw. Mn-Cu-Bindungslängen (Mn-Mn: $\approx 2.8 \text{ \AA}$; Mn-Cu: $\approx 2.7 \text{ \AA}$, aber im Bereich der Cu-Gitterkonstante (Cu-Cu: $\approx 2.55 \text{ \AA}$) liegt. Die Mn-Atome untereinander werden bei einer solchen Verteilung der Bindungsplätze auf maximalem Abstand gehalten ($a = 3.1 \text{ \AA}$ in Abb. 7.26 rechts). Die Mn-Cu-Gitterabstände liegen erwartungsgemäß mit $\approx 2.7 \text{ \AA}$ in einem Bereich zwischen Mn-Mn- und Cu-Cu-Bindungen. Weiterhin bleibt die Gleitspiegelsymmetrie der $pg(4 \times 2)$ -Struktur bei der in Abb. 7.26 gezeigten schachbrettartigen Verteilung der Mn und Cu-Atome erhalten. Zusammenfassend steht das auf der Basis der Ionenstrahltrian-gulation entwickelte $pg(4 \times 2)$ -Strukturmodell in Übereinstimmung mit LEED- und STM-Messungen. Bemerkenswert dabei ist, dass, abgesehen von der Größe der Einheitszelle, die den

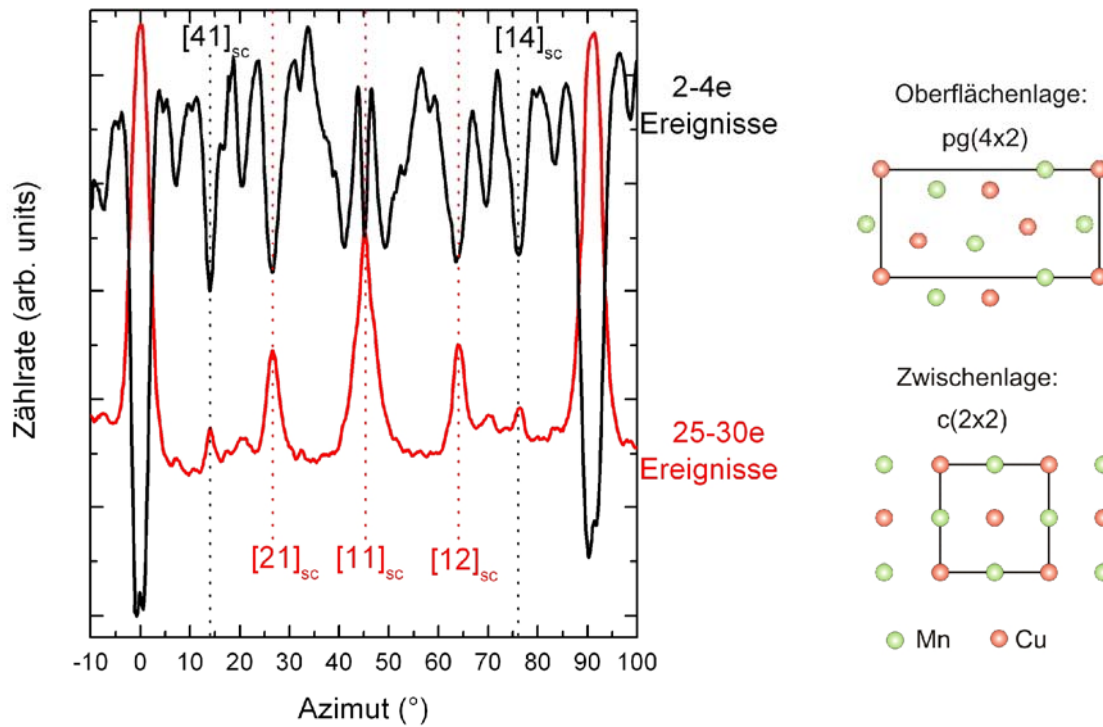


Abb. 7.27: Anzahl von 2-4 Elektronenemissionsereignissen (schwarz) und 25-30 Elektronenemissionsereignissen (rot) in Abhängigkeit vom azimutalen Einfallswinkel, während der streifenden Streuung ($\phi_{in}=1.6^\circ$) von H^0 -Projektilen auf 1.5 ML Mn/Cu(001) ($T_{growth}=420 \pm 10$ K, $p=0.008$ ML/s). Der Verlauf der schwarzen Kurve wird ausschließlich von der $pg(4 \times 2)$ -rekonstruierten Oberflächenlage bestimmt. Die auf tiefere Lagen (2. - 3. Lage) sensiblen hohen Elektronenemissionsanzahlen (rote Kurve) weisen auf eine quadratische $c(2 \times 2)$ Zwischenlage hin. Das lagenabhängige Strukturprofil ist rechts dargestellt.

LEED-Aufnahmen entnommen wurde, der $pg(4 \times 2)$ -Strukturvorschlag ausschließlich auf den Ionenstrahltriangulationsdaten beruht. Die aus dem LEED-Bild zu entnehmenden Symmetriebedingungen und die interpretierbaren Atompositionen aus den STM-Untersuchungen flossen nicht in die Strukturbestimmung mit ein, sondern sind vielmehr zusätzliche Strukturinformationen, die die Evidenz des $pg(4 \times 2)$ -Modells stützen.

Da die an der Legierung beteiligten tieferen Lagen eine zur geschlossenen Oberflächenlage ähnliche stöchiometrische Zusammensetzung aufweisen, bleibt zu klären, ob sich die $pg(4 \times 2)$ -Rekonstruktion der obersten Lage auch auf die Zwischenlagen erstreckt oder ein lagenabhängiges Strukturprofil vorliegt. Wie in Kap. 6.4. gezeigt, ermöglicht die Messung von Ereignissen mit höherer Elektronenanzahl Einblick in die Struktur der Zwischenlagen, d.h., in den IST-Kurven nehmen die Signalbeiträge der zweiten und dritten geschlossenen Legierungslage zu. Abb. 7.27 zeigt einen Vergleich von IST-Messungen niedriger (2-4e-Ereignisse) – und hoher Emissionsereignisse (25-30e-Ereignisse). Dabei weist die auf tiefere Lagen sensitive Messung (rote Kurve in Abb. 7.27) die wesentlichen Signaturen einer einfach quadratischen Struktur auf. Dazu gehören die Hauptkanäle bei $\theta=0^\circ$ ($[10]_{sc}$) und 45° ($[11]_{sc}$) sowie die nächst größeren Nebenkanäle bei $\theta=26.56^\circ$ ($[21]_{sc}$) bzw. 63.44° ($[12]_{sc}$). Prominente Richtungen der $pg(4 \times 2)$ -

rekonstruierten Oberflächenlage, die nicht mit Hauptrichtungen eines einfach quadratischen Gitters zusammenfallen, sind im Vergleich zur schwarzen Kurve in Abb. 7.27 deutlich unterdrückt. Dazu gehören die Peaks bei $\theta=7.1^\circ$ ($[81]_{sc}$), 20.56° ($[83]_{sc}$), 32.0° ($[58]_{sc}$) und 41.2° ($[78]_{sc}$). Die $[41]_{sc}$, $[21]_{sc}$ und $[11]_{sc}$ Richtungen eines einfach quadratischen Gitters fallen mit den Hauptrichtungen der rekonstruierten Oberflächenlage $[82]_{sc}$, $[84]_{sc}$ sowie $[88]_{sc}$ zusammen. Diese Überlagerung führt zur selektiven Erhöhung der Signalintensitäten der entsprechenden Winkellagen. Dementsprechend kann aus der IST-Kurve hoher Emissionsanzahlen auf eine einfach quadratische laterale Struktur der an der Legierung beteiligten Zwischenlagen geschlossen werden. Zusammen mit den erhöhten $c(2 \times 2)$ -LEED-Reflexintensitäten (siehe LEED-Bild in Abb. 7.25) und dem aus den Augeruntersuchungen geschlussfolgerten Cu-Anteil von ca. 50 % in der geschlossenen Interfacelage weisen die IST-Strukturuntersuchungen auf eine unrekonstruierte $c(2 \times 2)$ -Legierung in der Zwischenlage hin, d.h., die $pg(4 \times 2)$ -Rekonstruktion beschränkt sich nur auf die oberste geschlossene Lage.

Nachdem die lateralen Atompositionen der $Cu(001)pg(4 \times 2)Mn$ -Struktur über die Ionenstrahltriangulation festgelegt und in Konsens mit anderen Messverfahren (LEED, STM) hinreichend gesichert sind, müssen für ein abschließendes Strukturmodell die vertikalen Atompositionen der $pg(4 \times 2)$ -Einheitszelle, z.B. durch eine Neuauswertung der I/V-LEED- [FH92] oder der SXRD-Daten [PP05], festgelegt werden. Dieser Schritt ist für alle hier vorgestellten Strukturmodelle notwendig, konnte aber im zeitlichen Rahmen dieser Arbeit nicht realisiert werden.

7.8 Zusammenfassung

Auf der Basis der im 6. Kapitel vorgestellten Variante der Ionenstrahltriangulation wurden Strukturuntersuchungen an den Tief- und Hochtemperaturphasen des epitaktischen Systems Mn auf Cu(001) durchgeführt. Dabei zeigt sich, dass keines der aus der Literatur bekannten Strukturmodelle für die $c(8 \times 2)$ - und $c(12 \times 8)$ Mn-Tieftemperaturphase bzw. $p2gg(4 \times 2)$ Mn-Legierungsphase in hinreichender Übereinstimmung mit den aus den IST-Messungen folgenden Winkellagen und effektiven Öffnungsbreiten auftretender Kanäle steht. Dementsprechend wurden für diese Strukturphasen neue detaillierte Strukturmodelle erstellt, die sowohl in Übereinstimmung mit den IST-Messungen als auch mit qualitativen LEED-Untersuchungen stehen. Die quasihexagonalen Strukturmodelle der bedeckungsabhängigen Tieftemperaturphasen sind in Abb. 7.8 (1 ML Mn/Cu(001): Cu(001) $c(10 \times 2)$ Mn) und in Abb. 7.12 (2 ML Mn/Cu(001): Cu(001) $c(12 \times 8)$ Mn) dargestellt. Signifikant für beide Strukturmodelle ist die Versetzung benachbarter dichtgepackter $[10]_{sc}$ -Atomketten um $0.2\text{--}0.3\text{Å}$ in Kettenrichtung.

Aus kombinierten Wachstums-, Struktur- und chemischen Untersuchungen mittels streifender Ionenstreuung kann bei Raumtemperatur die lagenweise Ausbildung von zwei $c(2 \times 2)$ -rekonstruierten Cu/Mn-Legierungslagen bestätigt werden. Dabei sind die Cu-Oberflächenanteile von $42 \pm 6\%$ schachbrettartig in der ersten Lage verteilt. Bei Raumtemperatur geht der zur Oberflächenlegierungsbildung notwendige Cu/Mn-Interlagenaustausch mit Lage-für-Lage-Wachstum (Inselbildung und Koaleszens) einher. Bei nominellen Bedeckungen von mehr als 1.0 ML werden Cu/Mn-Austausch und -Diffusion zunehmend unterdrückt, was Inselwachstum zur Folge hat.

Bei 420 K wird die Legierungsbildung von Stufenkantenwachstum begleitet. Auch hier folgt bis zu einer nominellen Bedeckung von 1.0 ML die Ausbildung von zwei geschlossenen $c(2 \times 2)$ -CuMn-Legierungslagen (Cu-Oberflächenanteil: $50 \pm 6\%$). Fortschreitende Bedeckung führt hier zur Rekonstruktion der ersten geschlossenen Lage in eine $pg(4 \times 2)$ -Struktur. Das in Konsens mit STM und LEED stehende lagenabhängige $pg(4 \times 2)$ -Strukturmodell zeigt Abb. 7.27 rechts. Im Unterschied zur quadratischen $c(2 \times 2)$ -Oberflächenlegierung weist die $pg(4 \times 2)$ -Legierung hexagonale Bindungswinkel auf. Auch hier kann auf eine schachbrettartige Verteilung des $46 \pm 6\%$ -igen Cu-Oberflächenanteils geschlossen werden. Cu/Mn-Austausch und Interlagendiffusion bleiben auch bei höheren Bedeckungen noch aktiv, so dass im Gegensatz zum Raumtemperaturwachstum die Cu-Oberflächenkonzentration bei nominellen Mn-Bedeckungen von mehr als 2.0 ML im Bereich zwischen 40-50 % liegt.

8 Wachstum und Struktur von Fe auf Cu(001)

In diesem Kapitel werden kurz die wesentlichen Ergebnisse der im Rahmen dieser Dissertationsarbeit durchgeführten Untersuchungen zu Struktur und Magnetismus ultradünner Fe-Filme auf Cu(001) vorgestellt. Fe auf Cu(001) gilt als Modellsystem für das Wechselspiel struktureller und magnetischer Eigenschaften ultradünner 3d-Übergangsmetallfilme. Insbesondere die Stabilisierung von ferromagnetischem γ -Fe bei Raumtemperatur und der Einfluss temperaturabhängiger Oberflächenrekonstruktionen auf die magnetischen Eigenschaften ließen Fe/Cu(001) zu einem der meist untersuchten epitaktischen Systeme avancieren. Dabei gilt insbesondere die laterale Ausbildung der fcc-Fe-Phase als weitgehend etabliert. Auf der Basis aktueller STM und LEED-Untersuchungen wird allerdings die Ausbildung von fcc-artigem Fe auf Cu(001) angezweifelt. Die hier durchgeführten IST-Untersuchungen liefern einen wichtigen Beitrag zur Aufklärung dieser Kontroverse. Untersucht wurden in diesem Zusammenhang auch strukturelle Änderungen der Filme nach Wasserstoffadsorption. Eine ausführliche Beschreibung der hier durchgeführten Untersuchungen am System Fe/Cu(001) findet sich in der Diplomarbeit von M. Baron [BA05].

8.1 Das System Fe/Cu(001)

Ausgehend von den bedeckungsabhängigen strukturellen und magnetischen Eigenschaften ultradünner Fe auf Cu(001)-Filme während des Wachstums bei Raumtemperatur wird zwischen drei Regimen unterschieden (u.a.: [TM92], [HM96], [KG96]). Die bei Bedeckungen bis ca. 4 ML ferromagnetische Phase aller Fe-Lagen mit einer senkrecht zur Oberfläche stehenden Magnetisierungsrichtung wird als „RT I“ bezeichnet. Im Bedeckungsbereich von 5 bis 10 ML (Regime „RT II“) zeigen nur die obersten zwei Lagen eine ferromagnetische Ordnung, deren Magnetisierungsrichtung ebenfalls normal auf der Filmoberfläche steht. Alle tieferen Lagen sind antiferromagnetisch gekoppelt. Die in beiden Regimen Lage-für-Lage wachsenden Fe-Schichten weisen eine fcc-artige laterale Atomanordnung auf (γ -Fe-Phase). Für Bedeckungen von mehr als 10 ML (Regime „RT III“) setzt Inselwachstum ein, einhergehend mit einem strukturellen Phasenübergang von fcc nach bcc. Verbunden ist dieser Phasenwechsel mit dem Umklappen der Magnetisierungsrichtung in die Oberflächenebene hinein (in-plane Magnetisierung). Die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen zu Wachstum, Struktur und zur in-plane Magnetisierung stehen in voller Übereinstimmung mit diesem Schema. So können bei $T_{\text{growth}}=300$ K über die Spekularintensität reflektierter He-Projektile (Abb. 8.1 oben links) deutliche Wachstumsoszillationen auf hohem Intensitätsniveau (45 % der Ausgangsintensität) bis zu Bedeckungen von ca. 10 ML beobachtet werden, was auf glattes Lagenwachstum schließen lässt. Die oberhalb von 10 ML einsetzende Phasenänderung von fcc nach bcc geht mit Insel-

wachstum einher, welches für das exponentielle Abklingen der reflektierten Ionenintensität in diesem Bedeckungsbereich verantwortlich ist. Bei diesen Bedeckungen setzt auch die mittels

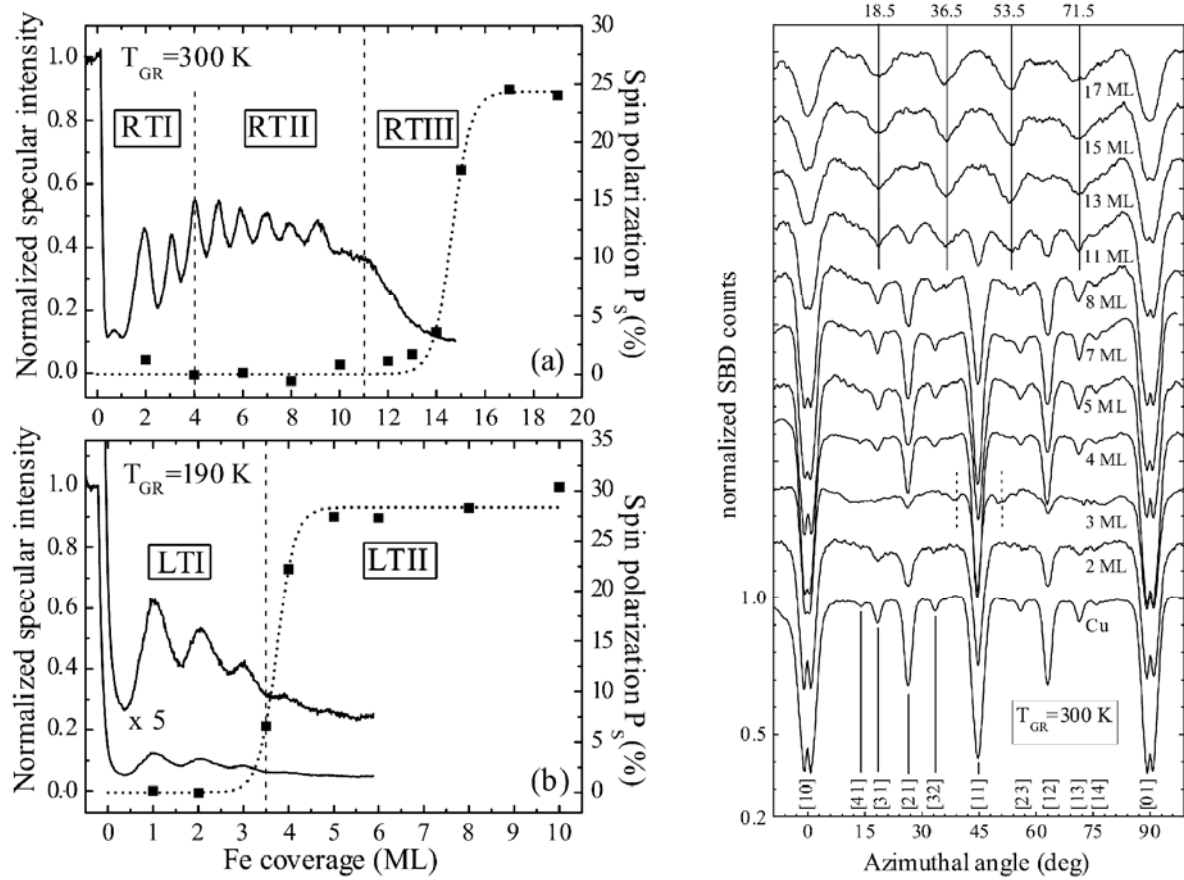


Abb. 8.1 links: Intensität spekulär reflektierter He^0 -Ionen (25 keV, $\phi_{in}=1.6^\circ$) während des Wachstums von Fe auf Cu(001) bei $T_{growth}=T_{meas}=300$ K und 190 K und über Elektroneneinfang (EC) gemessene bedeckungsabhängige Spinpolarisation P_s als Maß für die in-plane Magnetisierung der obersten Lage. Zu erkennen ist das Einsetzen der in-plane Magnetisierung in RT III bzw. LTII. Eingezeichnet sind die aus der Literatur bekannten magnetischen Raum- und Tieftemperaturphasen (RT I, II, III und LT I, II); rechts: 2-4e Emissionsereignisse während der Streuung von 29 keV H^0 -Projektilen ($\phi_{in}=1.6^\circ$) in Abhängigkeit vom azimuthalen Einfallswinkel (IST-Kurve) für verschiedene Fe auf Cu(001)-Bedeckungen ($T_{growth}=T_{meas}=300$ K, $p=0.008$ ML/s)

Elektroneneinfang nachweisbare in-plane Magnetisierung des Fe-Filmes ein. Die bei Raumtemperatur an den Fe-Schichten gemessenen IST-Kurven in Abhängigkeit von der Fe-Schichtdicke ($T_{meas}=T_{growth}=300$ K) zeigt Abb. 8.1 rechts. Deutlich zu erkennen ist der fcc nach bcc Übergang des Fe-Filmes im Bedeckungsbereich von mehr als 11 ML. In einem Übergangsbereich zwischen 10 ML und 12 ML koexistieren beide Strukturphasen. Die strukturellen IST-Analysen der bcc-Phasen RT III und LT II sowie magnetische Messungen sind in [BB06] zu finden. Im Folgenden werden in Kürze die Untersuchungsergebnisse zu den Raumtemperaturphasen RT I und RT II vorgestellt.

8.2 Die RT I-Phase

In der RT I Phase werden über LEED bei einer Bedeckung von 2.0 ML (4x1)- und für 4.0 ML (5x1)-Überstrukturreflexe beobachtet ([TF91], [HM95]). Eine Mischung beider Phasen wird bei 3.0 ML angenommen. Die Intensität dieser bei Raumtemperatur relativ schwachen satellitenartigen Reflexe (siehe Abb. 8.2) nimmt bei Abkühlen der Probe zu, so dass die I/V-LEED-Analysen dieser Filme bevorzugt bei tiefen Temperaturen durchgeführt wurden ([HM95]: $T_{\text{meas}}=90$ K). Das aus diesen LEED-Untersuchungen geschlussfolgerte fcc-artige Strukturmodell für 4.0 ML Fe/Cu(001) zeigt Abb. 8.3 rechts („sinus(5x1)“). Die sinusförmige Auslenkung der $[10]_{\text{sc}}$ -Atomreihen beträgt $u_p=0.4$ Å. Ein ähnliches Strukturmodell beschreibt die (4x1)-Phase. Die Struktur kann in zwei 90° zueinander gedrehten Domänen gleichberechtigt auftreten. Aktuellere STM-Untersuchungen von Varga et al. ([BT01], [BS04]) zeigen stattdessen bcc-artige nanomartensitische (4x1) und (5x1) Mikrodomänen (Abb. 8.3. rechts „nano(4x1)“, d.h. drei bis vier Gitterabstände schmale Streifendomänen, in denen die $[10]_{\text{sc}}$ -Atomreihen $\pm 14^\circ$ gesichert zur Cu(001)-Unterlage angeordnet sind. Allerdings zeigen die vornehmlich bei tiefen Probertemperaturen durchgeführten STM-Messungen ($T_{\text{meas}}=80$ K) keine ferngeordneten Strukturphasen. Die in den STM-Bildern [BT01] gezeigten, kaum geordneten Bereiche von ca. 20×20 Å² liegen weit unter der für die Ausbildung von LEED-Reflexen notwendigen Kohärenzlänge von ca. 100 Å. Unter der Annahme einer langreichweitig geordneten nanomartensitischen Struktur, wie in Abb. 8.3 dargestellt, können allerdings auch quantitativ die beobachteten LEED-Überstrukturreflexe erklärt werden [HM04]. So führt die auf der Basis des nanomartensitischen Strukturmodells durchgeführte Revision der I/V-LEED-Daten aus [HM95] zu einer vergleichbar guten Anpassung [BT04], so dass über LEED nicht eindeutig entschieden werden kann, welches der Strukturmodelle die langreichweitig geordneten Oberflächenbereiche in RT I beschreibt.

In der RT I-Phase wurden bei Raumtemperatur IST-Kurven für den 2, 3 und 4 ML Fe-Film aufgenommen (Abb. 8.1 rechts). Die IST-Kurven bei 2.0 ML und 4.0 ML sind einer *lateral* unrekonstruierten quadratischen Oberfläche zuzuordnen. Allerdings lassen die reduzierten Peakhöhen höherindizierter Kanäle bei 2.0 ML geringfügige sinusartige Auslenkungen von weniger als $u_p=0.2$ Å zu. Daraus folgend sind hier für die LEED-Überstrukturreflexe eher vertikale Korrugationen verantwortlich. Mögliche Änderungen der Oberflächenstruktur durch Absenken der Messtemperatur, wie im Folgenden beim 3.0 ML Film gezeigt, wurden für den 2.0 und 4.0 ML Film nicht untersucht.

Deutliche Abweichungen vom Kurvenverlauf für das Cu(001)-Substrat, die auf eine in-plane Versetzung der Fe-Atome schließen lassen, zeigen sich nur bei Bedeckungen von 3.0 ML. Ob-

wohl aus den Wachstumsoszillationen (Abb. 8.1 links) eine vergleichbare Oberflächenrauigkeit geschlossener Filmlagen bis zu einer Bedeckung von 9.0 ML folgt, weist der 3.0 ML Fe-Film

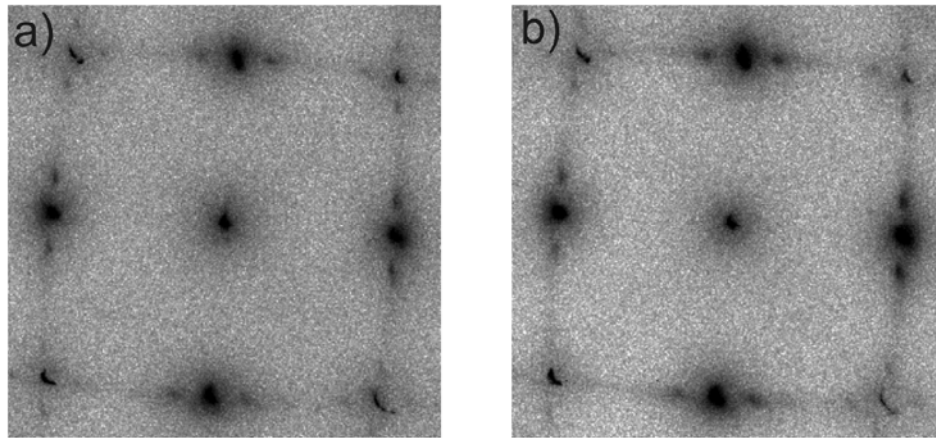


Abb. 8.2: unmittelbar nach den IST-Messungen (Abb. 8.3) aufgenommene LEED-Bilder eines 3.0 ML Fe/Cu(001) Films ($T_{\text{growth}}=300$ K) bei $T_{\text{meas}}=300$ K (a) und nach dem Abkühlen des Films auf $T_{\text{meas}}=140$ K (b), zu erkennen ist die Zunahme der (5x1)-Überstruktureflektre

im Vergleich z.B. zum 7.0 ML Film reduzierte relative $[10]_{\text{sc}}$ - Peakhöhen auf. Dies deutet auf einen erhöhten Oberflächenanteil hin, der keine strukturelle Fernordnung besitzt (für IST: Bereiche kleiner als $\text{ca. } 50 \times 50 \text{ \AA}^2$). Aus der reduzierten $[10]_{\text{sc}}$ -Peakhöhe kann über den Vergleich mit der $[10]_{\text{sc}}$ -Peakhöhe des 7.0 ML Films (siehe Kap. 8.2) ein nicht ferngeordneter Oberflächenanteil von ca. 20 % (3.0 ML $T_{\text{growth}}=T_{\text{meas}}=300$ K) abgeschätzt werden. (Eine solche Abschätzung ist gerechtfertigt, da die bei 3.0 ML auftretende sinusartige (4x1) bzw. (5x1)-Rekonstruktion mit Versetzungen im Bereich von $\pm 0.2 \text{ \AA}$ kaum Einfluss auf die Eindringwahrscheinlichkeit der Projektile entlang des $[10]_{\text{sc}}$ -Kanals (Kanalbreite: 2.556 \AA) hat. Die Reduzierung des $[10]_{\text{sc}}$ -Signals wird daher hauptsächlich durch ungeordnete Oberflächenbereiche hervorgerufen. Ein Vergleich der bei Raumtemperatur aufgenommenen IST-Kurve eines 3.0 ML Fe-Filmes mit den simulierten IST-Kurven der von [HM95] bzw. [BT01] vorgeschlagenen Strukturmodelle zeigt Abb. 8.3 links. In qualitativer Übereinstimmung mit der IST-Messung ($T_{\text{meas}}=300$ K) steht eine sinusartige (5x1)-Rekonstruktion (Abb. 8.3 rechts, „sinus(5x1)“).

Die beste Anpassung an die IST-Messung kann durch eine Überlagerung von sinusartiger (5x1)-Überstruktur zu 65 % und sinusartiger (4x1)-Überstruktur zu 35 % erzielt werden (genauer dazu in [BA05]). Strukturmodelle mit größerer sinusartiger Auslenkung, d.h. mit $u_p > 0.45 \text{ \AA}$, wie z.B. in [BF95] vorgeschlagen, führen zu deutlichen Abweichungen von der Messkurve. Insbesondere der bei 3.0 ML prominente $[11]_{\text{sc}}$ - Kanal bei $\theta=45.0^\circ$ weist eindeutig auf eine fcc-artige in-plane Struktur der langreichweitig geordneten Oberflächenanteile hin. Ein signifikanter Beitrag nanomartensitischer Oberflächenanteile an der bei Raumtemperatur gemessenen

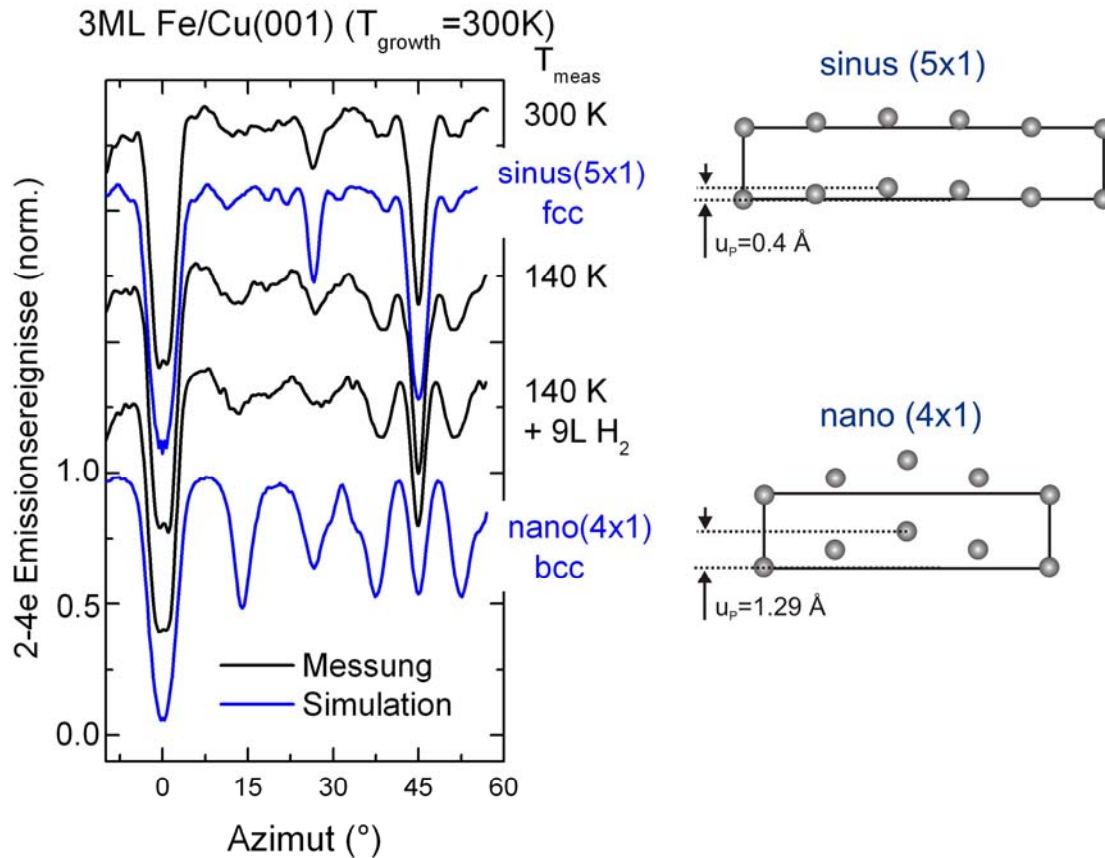


Abb. 8.3 links: (—) IST-Kurven eines 3.0 ML Fe/Cu(001)-Films ($T_{\text{growth}}=300\text{ K}$) unmittelbar nach der Deposition ($T_{\text{meas}}=300\text{ K}$), nach dem Abkühlen der Probe auf $T_{\text{meas}}=140\text{ K}$ und anschließender Dosierung mit 9 L H_2 . Zum Vergleich sind die aus der Trajektorienimulation gewonnenen IST-Kurven (Moliere-Potential mit $a=0.18\text{ a.u.}$, $\Theta_{\text{DL}}=172\text{ K}$, $\Theta_{\text{DJ}}=202\text{ K}$) für die sinusartige (5x1)- (aus [HM95]) und für die nanomartensische (4x1)- (aus [BT01]) Struktur dargestellt. Die Einheitszellen der entsprechenden Strukturvorschläge sind rechts abgebildet. Alle Kurven wurden auf die $[10]_{\text{sc}}$ -Peakhöhe normiert. Aus dem Vergleich der Messkurven mit den simulierten Kurven ist der Übergang von sinusartiger Struktur bei $T_{\text{meas}}=300\text{ K}$ zur nanomartensischen Struktur durch Abkühlen der Probe und anschließender H_2 -Dosierung (9 L) erkennbar

3.0 ML Fe-Schicht kann ausgeschlossen werden. Dementsprechend sind die bei $T_{\text{meas}}=300\text{ K}$ beobachtbaren (5x1)-LEED-Überstrukturreflexe (Abb. 8.2 a), auf eine sinusartige Rekonstruktion zurückzuführen. Abkühlen des bei Raumtemperatur präparierten 3 ML Fe-Filmes auf $T_{\text{meas}}=140\text{ K}$ hat Änderungen der Oberflächenstruktur zur Folge. Aus der kontinuierlichen Verringerung der $[10]_{\text{sc}}$ -Peakhöhe während des Abkühlvorgangs kann eine Erhöhung des nicht ferngeordneten Oberflächenanteils von ca. $20\pm 10\%$ bei 300 K auf ca. $50\pm 15\%$ bei 140 K abgeschätzt werden.

Weiterhin führt die Reduzierung der Proben temperatur zur Verringerung des $[11]_{\text{sc}}$ -Signals ($\theta=45.0^\circ$), einhergehend mit höheren Signalen bei $\theta=38.5^\circ$ (51.5°) und $\theta=13.5^\circ$ (76.5°). Der $[21]_{\text{sc}}$ -Peak bei $\theta=26.56^\circ$ wird durch das Abkühlen der Probe verbreitert und deutlich reduziert, so dass im Vergleich zur Raumtemperaturmessung eine Änderung der Rangfolge der relativen Signalthöhen auftritt. Insgesamt weisen die Messkurven während des Abkühlens der Probe zu-

nehmend Charakteristiken langreichweitig geordneter nanomartensitischer Strukturen auf. Die geringen Signalhöhen lassen allerdings eine genaue Bestimmung der langreichweitig geordneten nanomartensitischen und sinusartigen Strukturanteile nicht mehr zu. Das Einfrieren von thermisch induzierten Domänenwandverschiebungen während des Abkühlens der Probe, wie für die RT II Phase in [BT04] vorgeschlagen, kann die beobachtbaren Änderungen der IST-Kurven nicht erklären, da die im Bereich von fs liegenden Wechselwirkungszeiten der gestreuten Projektile um drei Größenordnungen kleiner sind als typische Oberflächendebye-frequenzen. Dementsprechend probt jedes Projektil unabhängig von der Messtemperatur eine „eingefrorene Oberfläche“. Weiterhin folgt aus den IST-Messungen bei 300 K und 140 K, dass die beobachtbare Zunahme der (5x1)-LEED-Reflexintensitäten bei tiefen Temperaturen (Abb. 8.2) nicht allein durch den Einfluss des Debye-Waller-Faktors zu erklären ist, sondern mit einer tatsächlichen Änderung der Oberflächenstruktur einhergeht.

Eine mögliche Erklärung für die Zunahme bcc-artiger nanomartensitischer Strukturanteile ist eine effektive Adsorption (hoher Haftkoeffizient) von Wasserstoff während des Abkühlens der Probe (typische Abkühlzeiten von 300 K auf 140 K: 20-30 min, bei einem integralen Basisdruck von $p=5 \cdot 10^{-11}$ mbar). Dieser Vermutung folgend wurde der auf 140 K abgekühlte 3 ML Film für 15 s einem H_2 -Druck von $1 \cdot 10^{-7}$ mbar ausgesetzt (ca. 1-2 L). Die anschließend aufgenommene IST-Kurve (Abb. 8.3. links) weist eine Verstärkung der schon beim Abkühlen auftretenden strukturellen Veränderungen auf. So nimmt der nicht ferngeordnete Oberflächenanteil von 50 ± 15 % vor, auf über 65 % nach der H_2 -Exposition zu, einhergehend mit einer weiteren Zunahme nanomartensitischer Anteile an den verbleibenden langreichweitig geordneten Strukturen.

Zusammenfassend weisen die bei Raumtemperatur präparierten und untersuchten Fe-Filme im Regime RT I eine einfach quadratische in-plane Atomanordnung der Oberflächenlage auf. Kleinere sinusartige (4x1) und (5x1) in-plane Auslenkungen der Atome von maximal ± 0.2 Å konnten nur für den 3.0 ML Film nachgewiesen werden. Kennzeichnend für diese Schichtdicke ist auch ein erhöhter nicht ferngeordneter Oberflächenanteil. Langreichweitig geordnete nanomartensitische Oberflächenanteile können bei $T_{\text{meas}}=300$ K ausgeschlossen werden. Abkühlen des 3.0 ML Films und anschließende Wasserstoffadsorption erhöht den Oberflächenanteil nicht ferngeordneter Strukturen, wobei die reduzierten Anteile ferngeordneten Bereiche eine zunehmend nanomartensitische Atomanordnung, d.h. stärkere Auslenkungen u_p , aufweisen. Die IST-Untersuchungen im Bereich RT I legen den Schluss nahe, dass trotz guter UHV-Bedingungen H -Restgasadsorption während des Abkühlens der Probe ursächlich für die über STM ([BT01], [BS04]) beobachtete nanomartensitische Oberflächenrekonstruktion ist. Da sich die laterale Atomanordnung des 3 ML Fe-Films (RT I) zugunsten bcc-artiger Strukturen mit sinkender

Messtemperatur kontinuierlich ändert, kann generell aus Strukturanalysen, die bei kryogenen Temperaturen an diesem System durchgeführt wurden (LEED:STM:etc.), nicht unmittelbar auf die Struktur bei Raumtemperatur geschlossen werden.

8.3 Die RT II-Phase

I/V-LEED-Analysen an einem bei Raumtemperatur präparierten und bei $T_{\text{meas}}=90$ K gemessenen 6 ML Fe/Cu(001) Film (RT II) führen auf die in Abb. 8.5 dargestellte pmg(2x1)-Atomanordnung der obersten Fe-Lage (z.B.: I/V-LEED: [HM95], SXRD: [MP05]). Gekennzeichnet ist die pmg(2x1)-Überstruktur durch laterale Zickzack-Versetzungen ($u_p \approx 0.3 \pm 0.1$ Å) entlang der $[10]_{\text{sc}}$ -Richtung. Allerdings werden die (2x1)-LEED-Überstrukturreflexe erst bei Messtemperaturen unterhalb von $T_{\text{meas}}=150$ K beobachtet [ZF94].

Dieses pmg(2x1)-Strukturmodell für die RT II-Phase wird durch neuere umfangreiche STM und LEED Messungen von Biedermann *et al.* ([BT04], [BS04]) angezweifelt. Obwohl die in [BT04] gezeigten Untersuchungen eines 7 ML Fe/Cu(001)-Filmes bei $T_{\text{meas}}=T_{\text{growth}}=300$ K auf eine unrekonstruierte quadratische fcc(001)-Atomanordnung schließen lassen, weist der Film nach Abkühlen der Probe auf $T_{\text{meas}}=5$ K eine p4g(2x2)-Rekonstruktion auf. Charakteristisch für die aus den Tieftemperaturmessungen geschlussfolgerte p4g(2x2)-Atomanordnung sind Zickzack-Versetzungen ($u_p=0.4$ Å) entlang der $[10]_{\text{sc}}$ - und der $[01]_{\text{sc}}$ -Richtung (siehe Abb. 8.5). Die bei 300 K nicht nachweisbare p4g(2x2)-Rekonstruktion wurde in [BT04] durch unkorrelierte thermische Bewegungen der Oberflächenatome (erhöhter Debye-Waller-Faktor) und durch schnell fluktuierende Domänengrenzen erklärt. Letzteres führt bei den Raumtemperaturmessungen zu einer Mittelung der tatsächlichen Atompositionen, so dass der eigentlich p4g(2x2)-rekonstruierte Film in den STM-Aufnahmen bei 300 K unrekonstruiert erscheint. Die in [BT04] ebenfalls durchgeführten H_2 -Adsorptionsuntersuchungen bei kryogenen Proben Temperaturen zeigen für geringe Wasserstoffmengen (~ 5 L) lediglich eine Dekorierung der weitgehend unveränderten p4g(2x2)-Fe-Struktur. Aus den bei $T_{\text{meas}}=T_{\text{growth}}=300$ K durchgeführten IST-Messungen bei Fe-Bedeckungen von einschließlich 4.0 ML bis 7.0 ML folgt im Gegensatz dazu eine *lateral* unrekonstruierte einfach quadratische Anordnung der Fe-Atome in der obersten Filmlage. Der 8.0 ML Film zeigt schon schwache Signaturen in die bcc-Phase (RT III) umgeklappter Domänen (Rückgang des $[21]_{\text{sc}}$ -Peaks und Erhöhung der Signale bei $\theta=36.5^\circ$ (53.5°)). Der eigentliche bedeckungsabhängige Phasenübergang von RT II nach RT III findet oberhalb von 10 ML statt. Im Unterschied zu den 2.0 und 3.0 ML in RT I weisen die Filme in RT II (4-8 ML) eine nahezu perfekte langreichweitige Ordnung auf. Die im Vergleich zur atomar glatten

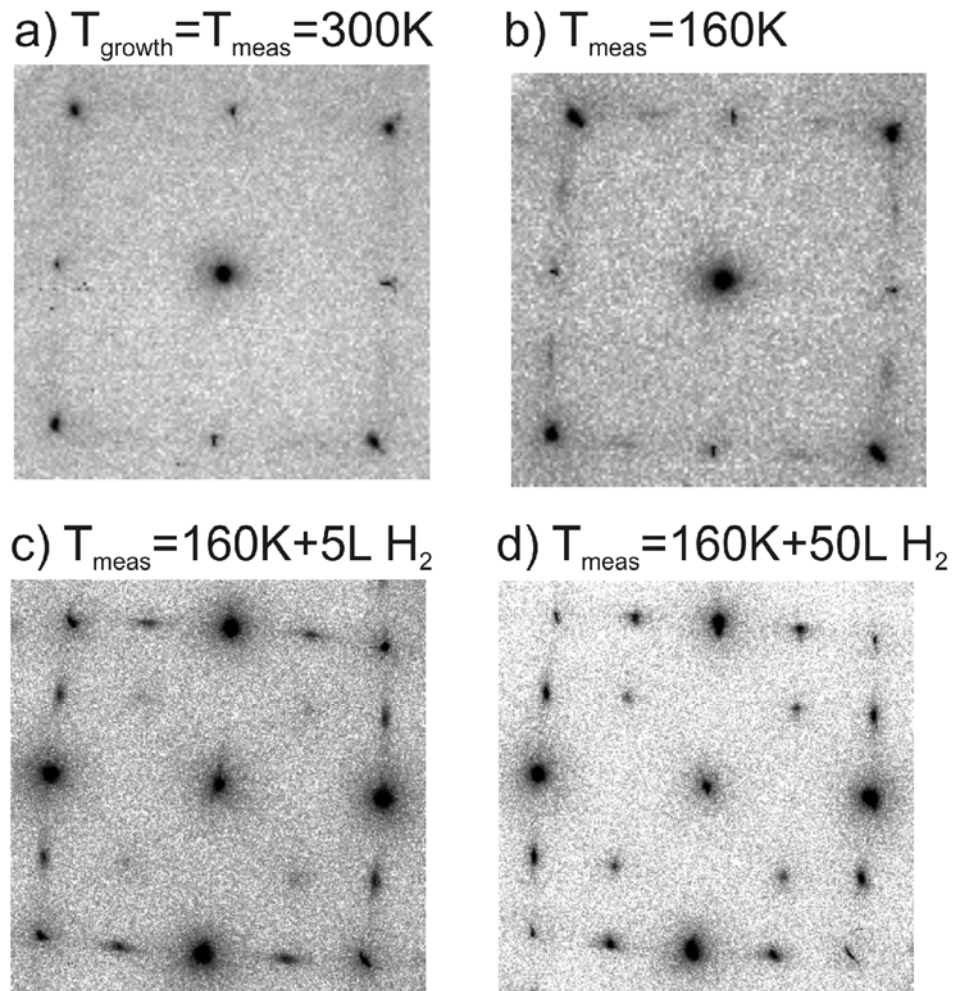


Abb. 8.4: unmittelbar nach den jeweiligen IST-Messungen (Abb. 8.5) aufgenommene LEED-Bilder eines 7.0 ML Fe/Cu(001)-Filmes ($T_{\text{growth}} = 300\text{ K}$) vor und nach dem Abkühlen der Probe (a, b). Anschließend wurde mit 5 L H_2 (c) und 50 L H_2 (d) dosiert. Zu erkennen ist der sich durch Abkühlen der Probe und Wasserstoffdosierung vollziehende Phasenwechsel von $p(1 \times 1)$ über $p2mg(2 \times 1)$ nach $p4g(2 \times 2)$

Cu(001)-Substratoberfläche nur geringfügig reduzierten relativen Peakhöhen, sind auf die wachstumsbedingte Filmrauigkeit (bei gutem Lage für Lage Wachstum) zurückzuführen. Die an dem 7.0 ML Fe-Film durchgeführten LEED-Messungen bei 300 K zeigen in Übereinstimmung mit den IST-Daten die vom Cu(001) bekannten $p(1 \times 1)$ -Reflexe (Abb. 8.4 a). Da, wie schon im vorigen Abschnitt erwähnt, die gestreuten Projektile aufgrund der geringen Wechselwirkungszeiten an einer „eingefrorenen“ Oberfläche gestreut werden, können fluktuierende Domänengrenzen, wie in [BT04] angenommen, als Ursache für die auch in den IST-Messungen nicht nachweisbare $p4g(2 \times 2)$ -Rekonstruktion bei 300 K ausgeschlossen werden. Folglich bestätigen die IST-Messungen zwar die bei Raumtemperatur durchgeführten STM und LEED-Aufnahmen aus [BT04] stehen aber im Widerspruch zu deren Interpretation. Abb. 8.4 zeigt die

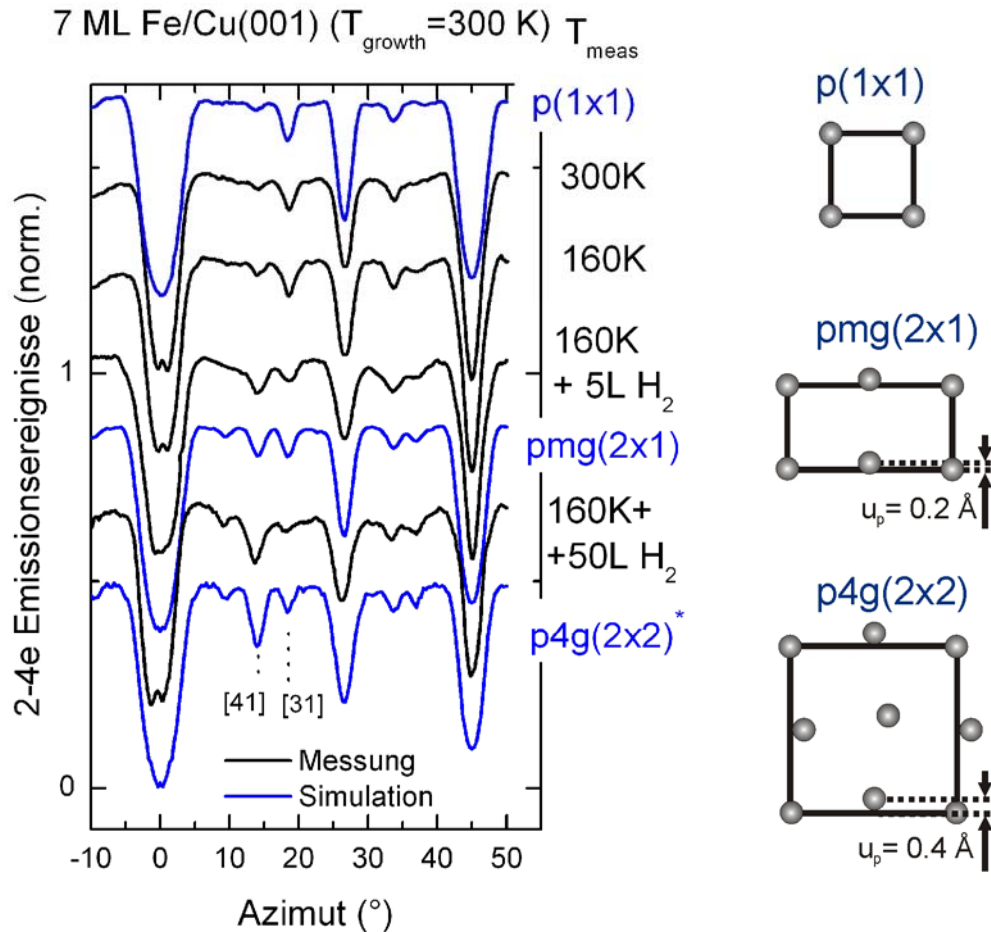


Abb. 8.5 links: (—) IST-Kurven eines 7.0 ML Fe/Cu(001)-Films ($T_{\text{growth}}=300\text{ K}$) unmittelbar nach der Deposition ($T_{\text{meas}}=300\text{ K}$), nach dem Abkühlen der Probe auf $T_{\text{meas}}=160\text{ K}$ und anschließender Dosierung mit 5 L H_2 und 50 L H_2 . Zum Vergleich sind die aus der Trajektorien-Simulation gewonnenen IST-Kurven (Moliere-Potential mit $a=0.18\text{ a.u.}$, $\Theta_{\text{DL}}=172\text{ K}$, $\Theta_{\text{DJ}}=202\text{ K}$) für die $p(1\times 1)$ -, die $\text{pmg}(2\times 1)$ (aus [HM95]) und für die $\text{p4g}(2\times 2)$ - (aus [BT04]) Struktur dargestellt. Die Einheitszellen der entsprechenden Strukturvorschläge sind rechts abgebildet. Aus dem Vergleich der Messung mit den simulierten Kurven ist (auch unter Hinweis auf die LEED-Untersuchungen (Abb. 8.4)) der Übergang von einfach quadratischer Struktur bei $T_{\text{meas}}=300\text{ K}$ und 160 K über die $\text{pmg}(2\times 1)$ -Rekonstruktion nach geringer H_2 -Dosierung (5 L) und die $\text{p4g}(2\times 2)$ -Struktur nach höherer H_2 -Dosierung (50 L) zu erkennen. Gezeigt ist die beste Anpassung ($\text{p4g}(2\times 2)^*$) an die Messkurve nach der 50 L H_2 -Dosierung die einer Überlagerung aus 50 % $\text{p4g}(2\times 2)$ und 50 % $\text{pmg}(2\times 1)$ entspricht.

zu den IST-Messungen (Abb. 8.5) komplementären LEED-Untersuchungen unmittelbar nach dem Aufdampfen bei Raumtemperatur (a), nach Abkühlen der Probe auf $T_{\text{meas}}=160\text{ K}$ (b) sowie nach anschließender Dosierung mit 5 L H_2 (c) und 50 L H_2 (d). Nach Abkühlen der Probe sind im LEED-Bild die aus der Literatur bekannten schwachen (2×1) -Überstrukturereflexe zu erkennen. Die an demselben Film durchgeführten IST-Messungen bei 160 K zeigen im Vergleich zur Raumtemperaturmessung keine signifikanten Unterschiede. Dementsprechend weist der 7.0 ML Fe-Film auch nach Abkühlen eine weitgehend unrekonstruierte quadratische laterale Atomanordnung auf. Aufgrund des geringfügigen Anstiegs des $[41]$ -Signals während des Abkühlens kann allerdings ein bis zu $25\pm 10\%$ $\text{pmg}(2\times 1)$ -Oberflächenanteil bei $T_{\text{meas}}=160\text{ K}$ nicht ausgeschlossen werden. Langreichweitig geordnete Oberflächenanteile einer $\text{p4g}(2\times 2)$ -

Rekonstruktion treten nicht auf. Die Adsorption geringer Mengen H_2 führen zur Rekonstruktion der fcc-Atomanordnung. Die LEED-Aufnahmen zeigen, dass durch die Dosierung mit 5 L H_2 die schon beim Abkühlen schwach erkennbaren (2x1)-Reflexintensitäten deutlich verstärkt werden (Abb. 8.4 c). Aus der dazugehörigen IST-Kurve (Abb. 8.5., $T_{\text{meas}}=160 \text{ K}+5 \text{ L } H_2$) ist eine Verringerung der $[31]_{\text{sc}}$ -Peakhöhe einhergehend mit der Verstärkung des $[41]_{\text{sc}}$ -Kanals zu entnehmen. Diese Änderungen stehen in Übereinstimmung mit der Ausbildung einer pmg(2x1)-rekonstruierten Oberfläche, wie der Vergleich der mit der simulierten IST-Kurve (Abb. 8.5, (—), pmg(2x1)) zeigt. Der im Unterschied zur Simulation in der Messkurve zu erkennende Rangfolgenwechsel der Peakhöhen des $[41]_{\text{sc}}$ -Kanals und des $[31]_{\text{sc}}$ -Kanals ist auf erste p4g(2x2)-Oberflächenanteile zurückzuführen (auch zu erkennen an den schwachen (2x2)-LEED-Reflexen in Abb. 8.4 c). Die mit zunehmender H-Adsorption kontinuierliche Änderung der $[41]_{\text{sc}}$ - und $[31]_{\text{sc}}$ -Signale weist darauf hin, dass schon für H_2 -Dosierungen deutlich unter 5 L die p2mg(2x1)-Rekonstruktion der Filmoberfläche abgeschlossen ist. Die anschließende Dosierung des 7.0 ML Fe-Films mit ca. 50 L H_2 führt zur p4g(2x2)-Rekonstruktion des Films, einhergehend mit der Ausbildung von (2x2)-Beugungsreflexen im LEED-Bild (Abb. 8.4 c). Die schon bei geringer H_2 -Dosis zu entnehmende Verstärkung des $[41]_{\text{sc}}$ -Kanals setzt sich mit zunehmender Wasserstoffadsorption fort. Die beste Anpassung an die experimentelle IST-Kurve (Abb. 8.5, $T_{\text{meas}}=160 \text{ K}+50 \text{ L } H_2$) kann durch eine Überlagerung aus 50 % pmg(2x1)- und 50 % p4g(2x2)- rekonstruierter Oberflächenanteile erzielt werden (Abb. 8.5, (—), p4g(2x2)*). Zusammenfassend zeigen kombinierte LEED und IST-Messungen, dass ein bei Raumtemperatur präparierter und untersuchter 7.0 ML Fe-Film auf Cu(001) (RT II-Phase) eine lateral unrekonstruierte fcc(001)-Oberflächenstruktur besitzt. Abkühlen des Filmes auf $T_{\text{meas}}=160 \text{ K}$ hat keine signifikanten Änderungen der lateralen Atomanordnung zur Folge. Die bei $T_{\text{meas}}=160 \text{ K}$ auftretenden schwachen (2x1)-LEED-Reflexe deuten auf geringe pmg(2x1)-rekonstruierte Oberflächenanteile hin. Über IST können diese Anteile auf höchstens $25 \pm 10 \%$ abgeschätzt werden. In jedem Fall bleiben aber die unrekonstruierten fcc-Oberflächenanteile auch bei 160 K dominant. Das Auftreten langreichweitig geordneter p4g(2x2)-Strukturen kann bei beiden Messtemperaturen über IST ausgeschlossen werden. In Analogie zu den Untersuchungen der RT I Phase liegt auch hier die Vermutung nahe, dass die effektive Adsorption von Wasserstoff während des Abkühlens ursächlich sowohl für die pmg(2x1)- [HM95] als auch für die p4g(2x2)-Rekonstruktion [BT04] ist. Bestätigt wird diese Annahme durch Wasserstoffadsorptionsexperimente. Nach einer H_2 -Dosis von weniger als 5 L bei $T_{\text{meas}}=160 \text{ K}$ kann über IST und LEED auf eine pmg(2x1)-Rekonstruktion der gesamten Film-Oberfläche geschlossen werden. Bei Erhöhung der H_2 -Dosis weist der Film bis zu 50 % p4g(2x2)-rekonstruierte Oberflächenanteile auf.

8.4 Zusammenfassung

Abgesehen von der 3.0 ML Schicht weisen die Fe/Cu(001)-Filmlagen im Bereich RT I und RT II *lateral* unrekonstruierte fcc(001)-Oberflächenstrukturen auf.

Der fcc-artige 3.0 ML Fe-Film (RT I) ist gekennzeichnet durch schwache laterale sinusartige (4x1) und (5x1) Versetzungen entlang der dichtgepackten $[10]_{sc}$ ($[01]_{sc}$)-Richtungen. Die strukturelle Instabilität der Fe-Filme in RT I und in RT II während des Abkühlens und die Auswirkungen geringer Mengen adsorbierten Wasserstoffs führen tendenziell zu den gleichen Änderungen der Oberflächenstruktur. So nehmen während des Abkühlens des 3.0 ML Fe-Films die sinusartigen Auslenkungen der $[10]_{sc}$ -Atomketten zu. Verstärkt wird diese Strukturänderung durch die Adsorption von H_2 , so dass langreichweitig geordnete nanomartensitische Oberflächenanteile sich erst nach einer H_2 -Dosierung von 5-9 L herausbilden.

Der 7.0 ML Fe-Film (RT II) zeigt erst nach Abkühlen auf 160 K schwache (2x1)-Überstrukturreflexe (Abb. 8.4 b), die auf die Ausbildung geringer pmg(2x1)-Oberflächenanteile schließen lassen. Auch hier führt Wasserstoffadsorption zuerst zur Verstärkung der (2x1)-LEED-Reflexe, einhergehend mit der vollständigen pmg(2x1)-Rekonstruktion der Filmoberfläche. Erst nach höheren Wasserstoffdosierungen bilden sich die in [BT04] beobachteten p4g(2x2)-rekonstruierten Oberflächenanteile heraus.

Dies legt die Vermutung nahe, dass trotz hervorragender UHV-Bedingungen H_2 -Restgasadsorption während des Abkühlens der Probe ursächlich für die „thermische“ Instabilität der Fe-Filme ist und zu den von Varga et al. ([BT04], [BS04], [BT01]) bei kryogenen Messtemperaturen beobachteten nanomartensitischen (nxm)-Strukturen in RT I und RT II führen. Kritisch zu beurteilen sind unter diesem Aspekt generell quantitative Strukturanalysen, die bei kryogenen Messtemperaturen an den Raumtemperaturphasen von Fe/Cu(001) durchgeführt wurden.

9 Zusammenfassung

Im energiedispersiven Betrieb eines SPA-LEED-Systems wurde die bei der streifenden Ionenstreuung (25 keV He^+ bzw. 29 keV H^+ , $\phi_{\text{in}}=1.6^\circ$) auftretende Raumwinkelverteilung emittierter Elektronen in Abhängigkeit von der Detektionsenergie (15-100 eV) und vom azimutalen Einfallswinkel untersucht (Kapitel 4). Für die Ionenstreuung entlang niederindizierter Richtungen konnten reflexartige Emissionsintensitäten (10 % - 30 % der Gesamtintensität) in den Winkelverteilungen gemessen werden. Sowohl das Auftreten als auch das energetische und azimutale Verhalten dieser Reflexe ist mit elastischer Beugung und direkter Emission angeregter Elektronen zu verstehen.

Die Streuung von Valenzelektronen am einfallenden Projektil und dadurch initiierte Sekundärelektronenkaskaden führen zu einer räumlichen Verteilung angeregter Elektronenzustände innerhalb der Kristalloberfläche. Dabei wird eine angeregte ebene Welle mit Ausbreitungsrichtung parallel zur Oberfläche innerhalb ihrer mittleren freien Weglänge ($\approx 10 \text{ \AA}$) an einzelnen Atompotentialen gestreut. Dies führt zum einen zu einer deutlichen Dämpfung der Streuamplitude der sich ausbreitenden Primärwelle und zum anderen, durch die feste Phasenbeziehung der entstehenden Streuwellen, zur kohärenten Emission von Elektronen in definierte Winkelbereiche. Die Winkelpositionen der ioneninduzierten LEED-Reflexe (IILEED) können mit Hilfe einer modifizierten Ewaldkonstruktion und der Winkelverteilung angeregter Elektronen (Anregungskonus) nachvollzogen werden. Sowohl die Abhängigkeit der Beugungswinkel von der Detektionsenergie als auch die mit der Rotation der Oberfläche einhergehende Drehung der IILEED-Spots steht in Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen. Aus der Intensitätsverteilung für Anteile gebeugter Elektronen können Informationen über deren Anregung innerhalb der Kristalloberfläche gewonnen werden. So ist aus den Beugungsreflexen, auf eine anisotrope Winkelverteilung angeregter Elektronen in der Cu(001)-Oberfläche mit erhöhter Elektronenanregung entlang niederindizierter Oberflächengitterrichtungen zu schließen. Weiterhin gestatten die Beugungsintensitäten Rückschlüsse auf den Öffnungswinkel des elektronischen Anregungskonus innerhalb der Kristalloberfläche.

Das Lagenwachstum ultradünner metallischer Filme führt zu einer direkt mit dem jeweiligen Wachstumsstadium (Nukleation, Aggregation, Koaleszens) korrelierten Änderung der ioneninduzierten Elektronenemission (Kapitel 5). Die wachstumsbedingte Zunahme von Stufenkanten und Defektstrukturen (Inselränder, Nukleationskeime etc.) erhöht die Wahrscheinlichkeit für binäre Projektil-Oberflächenatom-Wechselwirkungen, einhergehend mit Promotionseffekten und Binärstoßanregungen von Core-Elektronenzuständen. Diese angeregten hochenergetischen Elektronen werden zum Teil direkt emittiert oder verbleiben an der Oberfläche als Auslöser für

Elektronenkaskaden. Insgesamt führen diese wachstumsinduzierten Elektronenanregungsprozesse zu einem additiven exponentiell abklingenden Intensitätsanteil in den Energiespektren und eröffnen insbesondere für die protoneninduzierte Augerspektroskopie die Möglichkeit, durch die in-situ Aufnahme von Energiespektren synchron den Grad der Bedeckung und die stöchiometrische Zusammensetzung der Oberfläche zu bestimmen.

Damit steht mit der Ioneninduzierten Elektronenemission eine zu RHEED oder zur streifend reflektierten Ionenintensität alternative Methode zur Wachstumskontrolle und Charakterisierung zur Verfügung. Eine messtechnisch einfache Variante ist die während des Filmwachstums kontinuierliche Messung des Ioneninduzierten Targetstromes. Notwendig dafür sind eine isoliert aufgehängte elektrisch leitende Probe und ein nA-Meter. Eine weitere attraktive Variante der Wachstumsüberwachung ist die Registrierung der Anzahlverteilung emittierter Elektronen mittels Sperrschichtdetektor. Zum einen eröffnet die Detektion aller auf der Oberfläche stattfindenden Emissionsereignisse die Möglichkeit einer von Strahlinstabilitäten unabhängigen Wachstumsüberwachung (selbstnormierendes Verfahren), zum anderen werden verschwindend geringe Ionenströme von unter einem fA zur Aufnahme von Wachstumsoszillationen benötigt.

Die Ionenstrahltriangulation ist eine Messmethode zur Bestimmung der azimuthalen Winkellagen und Kanalbreiten dichtgepackter Atomreihen von langreichweitig geordneten Kristalloberflächen (Kapitel 6). Dabei werden unter flachen Einfallswinkeln (1° - 2°) leichte Atome oder Ionen (He, H) bei Primärenergien von einigen 10 keV über die Oberfläche gestreut. Fällt der Projektilstrahl bei azimuthaler Drehung der Probe parallel zu einer niederindizierten Oberflächenkanalrichtung ein, so findet die Streuung der Projektilteilchen nicht an einem planaren Oberflächenpotential, sondern an axialen Kettenpotentialen statt. Dieser Übergang von planarer zu axialer Streusymmetrie wird über die Änderung der Ioneninduzierten Elektronenemission nachgewiesen. In Kapitel 6 wurde eine neue, auf der Elektronenanzahlstatistik beruhende, Variante der Ionenstrahltriangulation vorgestellt. Über ein elektrostatisches Absaug- und Beschleunigungsfeld werden die vom Atomstrahl an der Probenoberfläche emittierten Elektronen auf einen Halbleiterdetektor fokussiert. Dieser Aufbau ermöglicht die Registrierung der pro Streuprozess emittierten Anzahl von Elektronen. Die relative Änderung der Anzahlverteilung bei axialer Streuung weist auf Projektilanteile hin, die unter die oberste atomare Lage gelangen, dort axial geführt werden und eine Vielzahl von Elektronen auslösen. Diese über die Anzahlstatistik realisierbare Selektion an der Oberfläche reflektierter (niedrige Elektronenanzahlen: hier 2-4e Prozesse) bzw. transmittierter Projektilanteile eröffnet den theoretischen Zugang zur quantitativen Simulation von Ionenstrahltriangulationsmessungen. Diese Simulation umfasst die Berechnung von Projektiltrajektorien unter dem Einfluss geschirmter Coulombpotentiale der Oberflächen-

atome. Entsprechend den Überlegungen zur Emissionsstatistik wurde in der Simulation der Anteil an Projektilen registriert, der *nicht* unter die erste atomare Lage gelangt (oberflächenreflektierter Anteil). Verglichen wird die azimutale Abhängigkeit des oberflächenreflektierten Projektilanteils der Simulation mit der Änderung der Anzahl an Emissionsereignissen, die zur Emission weniger Elektronen führen (IST-Kurve). Über eine moderate Anpassung des Wechselwirkungspotentials und der parallelen bzw. senkrechten Oberflächen-Debyetemperaturen (als Maß für die mittlere Auslenkung der Kristallatome) kann eine quantitative Übereinstimmung zwischen simulierten und experimentellen IST-Kurven erzielt werden. Aus dem Vergleich der simulierten mit der experimentellen IST-Kurve können Strukturmodelle erstellt oder bestehende Strukturmodelle überprüft werden. Mittels IST können so die *lateralen* Atompositionen langreichweitig geordneter Oberflächenstrukturen auf mehrere hundertstel Å genau festgelegt werden.

Auf der Basis der in Kapitel 6 vorgestellten Variante der Ionenstrahltriangulation wurden Strukturuntersuchungen an den Tief- und Hochtemperaturphasen des epitaktischen Systems Mn auf Cu(001) durchgeführt (Kapitel 7). Dabei zeigt sich, dass keines der aus der Literatur bekannten Strukturmodelle für die $c(8 \times 2)$ - und $c(12 \times 8)$ Mn-Tieftemperaturphase bzw. $p2gg(4 \times 2)$ Mn-Legierungsphase in hinreichender Übereinstimmung mit den aus den IST-Messungen folgenden Winkellagen und effektiven Öffnungsbreiten auftretender Kanäle steht. Dementsprechend wurden für diese Strukturphasen neue detaillierte Strukturmodelle erstellt, die in Übereinstimmung mit den IST-Messungen und mit qualitativen LEED-Untersuchungen stehen.

Aus kombinierten Wachstums-, Struktur- und chemischen Untersuchungen mittels streifender Ionenstreuung kann bei Raumtemperatur die lagenweise Ausbildung von zwei $c(2 \times 2)$ -rekonstruierten Cu/Mn-Legierungslagen bestätigt werden. Dabei sind die Cu-Oberflächenanteile von 42 ± 6 % schachbrettartig in der ersten Lage verteilt. Bei Raumtemperatur geht der zur Oberflächenlegierungsbildung notwendige Cu/Mn-Interlagenaustausch mit Lage-für-Lage-Wachstum (Inselbildung und Koaleszens) einher. Bei nominellen Bedeckungen von mehr als 1.0 ML werden Cu/Mn-Austausch und -Diffusion zunehmend unterdrückt, was Inselwachstum zur Folge hat.

Bei 420 K wird die Legierungsbildung von Stufenkantenwachstum begleitet. Auch hier folgt bis zu einer nominellen Bedeckung von 1.0 ML die Ausbildung von zwei geschlossenen $c(2 \times 2)$ -CuMn-Legierungslagen (Cu-Oberflächenanteil: 50 ± 6 %). Fortschreitende Bedeckung führt hier zur Rekonstruktion der oberen Filmlage in eine $pg(4 \times 2)$ -Struktur. Aus den IST-Messungen wurde ein lagenabhängiges Strukturmodell für diese Phase erstellt. Auch hier kann auf eine schachbrettartige Verteilung des 46 ± 6 %-igen Cu-Oberflächenanteils geschlossen werden.

Cu/Mn-Austausch und Interlagendiffusion bleiben auch bei höheren Bedeckungen noch aktiv, so dass im Gegensatz zum Raumtemperaturwachstum die Cu-Oberflächenkonzentration bei einer nominellen Mn-Bedeckung von mehr als 2.0 ML im Bereich zwischen 40-50 % liegt.

In Kapitel 8 wurden IST-Strukturuntersuchungen an den Raumtemperaturphasen des Systems Fe/Cu(001) vorgestellt. Abgesehen von der 3.0 ML Schicht weisen die Fe/Cu(001)-Filmlagen im Bereich RT I und RT II *lateral* unrekonstruierte fcc(001)-Oberflächenstrukturen auf.

Der fcc-artige 3.0 ML Fe-Film (RT I) ist gekennzeichnet durch schwache laterale sinusartige (4x1) und (5x1) Versetzungen entlang der dichtgepackten $[10]_{sc}$ ($[01]_{sc}$)-Richtungen. Die strukturelle Instabilität der Fe-Filme in RT I und in RT II während des Abkühlens und die Auswirkungen geringer Mengen adsorbierten Wasserstoffs führen tendenziell zu den gleichen Änderungen der Oberflächenstruktur. So nehmen während des Abkühlens des 3.0 ML Fe-Films die sinusartigen Auslenkungen der $[10]_{sc}$ -Atomketten zu. Verstärkt wird diese Strukturänderung durch die Adsorption von H_2 , so dass langreichweitig geordnete nanomartensitische Oberflächenanteile sich erst nach einer H_2 -Dosierung von 5-9 L herausbilden.

Der 7.0 ML Fe-Film (RT II) zeigt erst nach Abkühlen auf 160 K schwache (2x1)-Überstrukturreflexe, die auf die Ausbildung geringer pmg(2x1)-Oberflächenanteile schließen lassen. Auch hier führt Wasserstoffadsorption zuerst zur Verstärkung der (2x1)-LEED-Reflexe, einhergehend mit der vollständigen pmg(2x1)-Rekonstruktion der Filmoberfläche. Erst nach höheren Wasserstoffdosierungen bilden sich p4g(2x2)-rekonstruierten Oberflächenanteile heraus.

Dies legt die Vermutung nahe, dass trotz guter UHV-Bedingungen H_2 -Restgasadsorption während des Abkühlens der Probe ursächlich für die „thermische“ Instabilität der Fe-Filme ist und zu den bei kryogenen Messtemperaturen beobachteten nanomartensitischen (nxm)-Strukturen in RT I und RT II führen. Kritisch zu beurteilen sind unter diesem Aspekt generell quantitative Strukturanalysen, die bei kryogenen Messtemperaturen an den Raumtemperaturphasen von Fe/Cu(001) durchgeführt wurden.

Literaturverzeichnis

- AL90 F. Aumayr, G. Lakits, H. Winter, Appl. Surface Science 00, 00789, 1990
- AM76 N. W. Ashcroft, N. D. Mermin, Solid State Physics, Holt, Rinehart & Winston, New York, 1976
- AR89 C. Argile, G. E. Rhead, Surf. Sci. Reports, 10, 277, 1989
- BA05 M. Baron, physis, Humboldt-Universität Berlin, 2005
- BA76 H. Bay, H. Andersen, W. O. Hofer, O. Nielsen, Appl. Phys. 11, 289, 1976
- BA93 R. A. Baragiola, Ionization of Solids by Heavy Particles, Plenum Press, New York, 1993
- BB06 T. Bernhard, M. Baron, M. Gruyters, H. Winter, Surf. Sci. 600, 1877, 2006
- BB88 M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F.Petroff et. al. Phys. Rev. Lett. 61, 2472, 1988
- BD01 R.A.Baragiola, C.A. Dukes, P. Riccardi, Nucl. Instr. Meth. B, 182, 73, 2001
- BD95 R. A. Baragiola, C. A. Dukes, Phys. Rev. Lett., 76, 2547, 1995
- BF95 J.V. Barth, D.E. Fowler, Phys. Rev. B 52 , 15, 1995
- BM93 P. Bayer, S. Müller, P. Schmailzl, K. Heinz, Phys. Rev. B 48, 17611, 1993
- BN99 D. Brown, T. Noakes, D. P. Woodruff, P. Bailey, Y. Goaziou, J. Phys.:Condens Matter 11, 1889, 1999
- BP03 T. Bernhard, R. Pfandzelter, H. Winter, Nucl. Instr. Meth. B 203, 111, 2003
- BP04 T. Bernhard, R. Pfandzelter, H. Winter, Nucl. Instr. Meth. B 219, 5678, 2004
- BS04 A. Biedermann, R. Tscheliessnig, M. Schmid, P. Varga, Appl. Phys. A 78, 807, 2004
- BS80 D. K. Brice, P. Sigmund, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 40, 8, 1980
- BT01 A. Biedermann, R. Tscheließnig, M. Schmidt, P. Varga, Phys. Rev. Lett. 87, 086123, 2001
- BT04 A. Biedermann, R. Tscheließnig, C. Klein, M. Schmidt, P. Varga, Surf. Sci. 563, 110, 2004
- BU60 J. Burns, Physical Review, 119,1,1960
- CB86 D.J. O'Connor, J.P.Biersack, Nucl. Instr. Meth. B 15, 14, 1986
- CG71 D. Clarke, J.F.Grainger, Polarized Light and Optical Measurement, Pergamon Press 1971
- CO86 J. M. Cowley, Prog. Surf. Sci. 21, 209, 1986
- CS99 E.V. Chulkov, V.M. Silkin, P.M. Echenique, Surf. Sci. 437, 330, 1999
- DF00 S. D'Addato, P. Finetti, Surf. Sci., 471, 203, 2001

-
- EH00 M. Eder, J. Hafner, E.G. Moroni, Phys. Rev. B. 61, 17, 2000
- ER65 C. Erginsoy, Phys. Rev. Lett. 15, 360, 1965
- FH92 T. Flores, M. Hansen, M. Wuttig, Surf. Sci., 279, 251, 1992
- FI58 O.B.Firsov, JETP 7, 308, 1958
- FJ97 T. Flores, S. Junghans, M. Wuttig, Surf. Sci., 371, 14, 1997
- GD86 M. Grasserbauer, H. J. Dudek, M. F. Ebel, Angewandte Oberflächenanalyse mit SIMS, AES und XPS, Akademie-Verlag Berlin, 1986
- GE74 D. S. Gemmell, Rev. Mod. Phys., 46, 129, 1974
- GH79 K. Gärtner, K. Kehl, Phys. Stat. Sol. B 94, 231, 1979
- GP93 Y. Gauthier, M. Poensgen, M. Wuttig, Surf. Sci., 303, 36, 1994
- HA54 H. D. Hagstrum, Phys. Rev. 96, 325, 1954
- HG94 Henzler, Göpel, Oberflächenphysik des Festkörpers, Teubner Stuttgart 1994
- HM04 L. Hammer, S. Müller, K. Heinz, Surf. Sci. 569, 1, 2004
- HM95 K. Heinz, S. Müller, P. Bayer, Surf. Sci. 352, 942, 1996
- HP95 A.B. Hayden, P. Pernan, D.P. Woodruff, J. Phys.: Condens. Matter 7, 1139, 1995
- HR92 D. Hasselkamp, H. Rothard, K.O. Groeneveld, J. Kemmler, P. Varga, H. Winter, Particle Induced Electron Emission II, Springer Tracts in Modern Physics Vol. 123, Springer Verlag, Heidelberg, 1991
- HÜ95 S. Hüfner, Photoelectron Spectroscopy, Springer-Verlag, Berlin, 1995
- HZ94 A. Hegmann, R. Zimny, H.W. Ortojohann, H. Winter, Z. Miskovic, Europhys. Lett. 26, 383, 1994
- IG01 T. Igel, Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin, 2001
- KG96 A. Kiriliyuk, J. Giergiel, J. Shen, M. Straub, J. Kirschner, Phys. Rev. B 54, 1050, 1996
- KK95 R. G. P. van der Kraan, H. van Kempen, Surf. Sci., 338, 19, 1995
- KN79 G. F. Knoll, Radiation Detection and Measurement, Wiley, New York, 1979
- LD88 P. K. Larsen, P. J. Dobson, Reflection High-Energy Electron Diffraction and Reflection Electron Imaging of Surfaces, Plenum, New York, 1988
- LE06 S. Lederer, Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin, 2006
- LI65 J. Lindhard, Mat. Fys. Medd. Kong. Dansk Videnskab Selskab 34, 14, 1965
- LJ01 J. Lee et. al J. Vac. Sci. Technol. B 19, 1366, 2001
- LM96 N. Lorente, R. Monreal, Surf. Sci., 370, 324, 1997
- LO97 J. Leuker, H. W. Ortojohann, R. Zimny, H. Winter, Surf. Sci. 388, 262, 1997
- LW05 S. Lederer, H. Winter, HP. Winter, Nucl. Instr. Methods B 232, 47, 2005

- MB94 S. Müller, P. Bayer, A. Kinne, P. Schmailzl, K. Heinz, Surf. Sci. 322, 21, 1995
- MM93 E. McDaniel, J. Mitchell, M. Rudd, Atomic Collisions, Wiley, 1993
- MO47 G. Moliere, Z. Naturforsch. A2, 133, 1947
- MP05 H. L. Meyerheim, R. Popescu, D. Sander, J. Kirschner, O. Robach, S. Ferrer, Phys. Rev. B 71, 035409, 2005
- NG98 D. Niemann, M. Grether, M. Rösler, N. Stolterfoht, Phys. Rev. Lett. 80, 3328, 1998
- NH94 H. P. Noh, T. Hashizume, D. Jeon, Y. Kuk, H. W. Pickering, T. Sakurai, Phys. Rev. B 50, 2735, 1994
- NI06 NIST Surface Structure Database: Version 5.0
- NM78 M. Negre, J. Mischler, N. Benazeth, C. Noguera, D. Spanjaard, Surf. Sci., 78, 174, 1978
- NM99 F. Nouvertne' et al., Phys. Rev. B 60, 14382, 1999
- NS91 A. Nürmann, M. Schleberger, W. Heiland, C. Huber, J. Kirschner, Surf. Sci. 251, 248, 1991
- NZ01 A. Niehaus, P.A. Zeijlmans van EmmichovenI, F. Urazgildin, B. van Someren, Nucl. Instr. Methods B 182, 1, 2001
- PB03 R. Pfandzelter, T. Bernhard, H. Winter, Phys. Rev. Lett. 90, 036102, 2003
- PF03 R. Pentcheva, K. A. Fichthorn, M. Scheffler, T. Bernhard, R. Pfandzelter, and H. Winter, Phys. Rev. Lett. 90, 076101, 2003
- PF98 R. Pfandzelter, Phys. Rev. B, 57, 15496, 1998
- PI00 R. Pfandzelter, T. Hecht, H. Winter, Phys. Rev. B 62, R2299, 2000
- PI59 W. Pitsch, Philos. Mag. 4, (1959), 577
- PI96 R. Pfandzelter, T. Igel, H. Winter, Phys. Rev. B 54, 4496, 1996
- PI98 R. Pfandzelter, T. Igel, H. Winter, JMMM, 192, 43, 1998
- PL93 R. Pfandzelter, J. Landskron, Phys. Rev. Lett. 9, 70, 1993
- PM90 S.P. Parkin, N. More, K.P. Roche, Phys. Rev. Lett. 64, 2304, 1990
- PO76 C. J. Powell, Rev. Mod. Phys. 48, 33, 1976
- PP05 W. Pan, R. Popescu, H.L. Meyerheim, D. Sander, O. Robach, S. Ferrer, Minn-Tsong Lin, J. Kirschner, Phys. Rev. B, 71, 174439, 2005
- PT02 S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, B.P. Flannery, Numerical Recipes in C/C++, Cambridge University Press, 2002
- PU03 R. Pfandzelter, H. Winter, I. Urazgildin, M. Rösler, Phys. Rev. B, 68, 165415, 2003
- RA80 H. Raether, Excitation of Plasmons and Interband Transitions by Electrons, Springer Tracts in Modern Physics, Vol.88, Springer-Verlag, Berlin, 1980
- RA82 C. Rau, JMMM 30, 141, 1982

-
- RB91 M. Rösler, W. Brauer, J. Devooght, J.C. Dehaes, A. Dubus, M. Cailler, J.P. Ganauchaud, Particle Induced Electron Emission I, Springer Tracts in Modern Physics Vol. 123, Springer Verlag, Heidelberg, 1991
- RS00 M. Rösler, Nucl. Instr. Meth. B, 164, 873, 2000
- RW03 R. Pfandzelter, H. Winter, I. Urazgildin, M. Rösler, Phys. Rev. B 68, 165415, 2003
- SC05 A. Schüller, [Humboldt-Universität Berlin, interne Mitteilung](#), 2005
- SD79 M.P. Seah, W.A. Dench, Quantitative Electron Spectroscopy of Surfaces: A Standard Data Base for inelastic Mean Free Paths in Solids, Surf. Interface Anal. 1, 2, 1979
- SG00 E.A. Sanchez, J.E. Gayone, M.L. Martiarena, O. Grizzi, R.A. Baragiola, Phys. Rev. B 61, 14209, 2000
- SH77 V. I. Shulga, Radiation Effects, Vol. 37, 1, 1978
- SH99 F. Schiller, Y. Huttel, J. Avila, M.C. Asensio, Surf. Sci. 433, 434, 1999
- SM87 U. Scheithauer, G. Meyer, M. Henzler, Surf. Sci. 178, 441, 1987
- SP96 Omicron, SPA-LEED Optics User's Guide, Version 1.6, 1996
- SV83 M. Schuster, C. Varelas, Surf. Sci., 134, 195, 1983
- SZ00 B. van Someren, P.A. Zeijlmans van Emmichoven, I.F. Urazgildin, A. Niehaus, Phys. Rev. 61, 032902, 2000
- TF91 J. Thomassen, B. Feldmann, M. Wuttig, Surf. Sci. 264, 406, 1992
- TM92 J. Thomassen, F. May, B. Feldmann, M. Wuttig, H. Ibach, Phys. Rev. Lett. 69, 3831, 1992
- TT96 R. Toomes *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter, 8, 10231, 1996
- VK00 R. Vollmer, J. Kirschner, Phys. Rev. B 61, 4146, 2000
- VN82 R. W. Vook and Y. Namba, Appl. Surf. Sci. 11, 400, 1982
- VS84 J. A. Venables, G.D. Spiller, M. Hanbucken, Rep. Prog. Phys., 47, 399, 1984
- WA87 Z. Q. Wang *et al.*, Solid State Commun., 62, 81, 1987
- WE01 HP. Winter, H. Eder, F. Aumayr, J. Lörincik, Z. Sroubek, Nucl. Instr. Methods B 182, 15, 2001
- WG93 M. Wuttig, Y. Gauthier, S. Blügel, Phys. Rev. Lett., 70, 23, 1993
- WH00 D. Wortmann, S. Heinze, G. Bihlmayer, S. Blügel, Phys. Rev. B 62, 2862, 2000
- WI02 H. Winter, Physics Reports Vol. 367, Nr.5, 2002
- WI86 H. Winter, Thesis, München, 1986
- WI92 H. Winter, Z. Phys. D 23, 41, 1992
- WJ96 M. Wuttig, S. Junghans, T. Flores, Phys. Rev. B 53, 7551, 1996
- WM04 H. Winter, K. Maass, S. Lederer, HP. Winter, F. Aumayr, Phys. Rev. B 69, 054110,

2004

- WO02 D.P.Woodruff, Surf. Sci., 500,147, 2002
- WT56 C.R. Worthington, S.G. Tomlin, Proc. Phys. Soc. London, A69, 401, 1956
- WT74 W. Williams, S. Traymar, Phys. Rev. Lett. 33, 187, 1974
- WT93 M. Wuttig, B. Feldmann, J. Thomassen, F. May, H. Zilgen, A. Brodde, H. Hanne-
mann, H. Neddermeyer, Surf. Sci. 291, 14, 1993
- WU88 S.C. Wu *et al.*, Phys. Rev. B 38, 5363, 1988
- WV99 P.R. Watson, M.A. Van Hove, K. Hermann, NIST Surface Structure Database, ver-
sion 3.0, NIST Standard Reference Database 42, Gaithersburg, 1999
- WW03 H. Winter, H.P. Winter, Europhys. Lett. 62, 739, 2003
- ZB85 J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, The Stopping and Range of Ions in Matter,
Band 1, Pergamon Press, 1985
- ZF94 H. Zillgen, B. Feldmann, M. Wuttig, Surf. Sci. 321, 32, 1994

Publikationsliste

1. R. Pfandzelter, T. Bernhard and H. Winter
„Spin-polarized electrons in collision of multicharged nitrogen ions with a magnetized Fe(001) surface”
Phys. Rev. Lett. 86 (2001) 4152
2. R. Pentcheva, K. Fichthorn, M. Scheffler, T. Bernhard, R. Pfandzelter, H. Winter
„Non-Arrhenius behaviour of island density in metal heteroepitaxy: Co on Cu(001)“
Phys. Rev. Lett. 90 (2003) 076101
3. R. Pfandzelter, T. Bernhard and H. Winter
„Ion beam triangulation of ultrathin Mn and CoMn films grown on Cu(001)”
Phys. Rev. Lett. 90 (2003) 036102
4. R. Pfandzelter, T. Bernhard and H. Winter
„Ion beam triangulation of surfaces and ultrathin films“
Surf. Rev. Lett. 10 (2003) 399
5. T. Bernhard, R. Pfandzelter and H. Winter
„Non-Arrhenius growth behaviour, bilayer, and reentrant layer growth for ultrathin Co films on Cu(001)“
Nucl. Instr. Meth. B 203 (2003) 111
6. T. Bernhard, R. Pfandzelter, and H. Winter
„Growth and structure of Mn and CoMn on Cu(001) studied by ion scattering“
Surf. Sci. 543 (2003) 36
7. T. Bernhard, R. Pfandzelter, and H. Winter
„Triangulation of a Cu(001) surface and an ultrathin Mn film via grazing ion surface scattering“
Nucl. Instr. Meth. B 219 (2004) 5678.
8. T. Bernhard, Z. L. Fang, and H. Winter
“Ion induced low energy electron diffraction”
Phys. Rev. A 69 (2004) 060901
9. T. Bernhard, R. Pfandzelter, M. Gruyters, and H. Winter
“Temperature-dependent intermixing of ultrathin Co films grown on Cu(001)”
Surf. Sci. 575 (2005) 154
10. M. Gruyters, T. Bernhard, and H. Winter
“Structural effects on magnetic behaviour of ultrathin Co films at T_c jump”
J. Magn. Mater. 292 (2005) 192
11. T. Bernhard and H. Winter
“Effect of ion beam irradiation on studies of surface magnetism via capture of spin-polarized electrons from a thin Co film on Cu(001)”
Nucl. Instr. Meth. B 232 (2005) 16
12. T. Bernhard and H. Winter
“Monitoring growth of ultrathin films via ion induced electron emission “
Phys. Rev. B 71 (2005) 241407
13. M. Gruyters, T. Bernhard, and H. Winter
“Evidence for noncollinearity between surface and bulk magnetization in ultrathin Co

- films”
 Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 227205
14. T. Bernhard, M. Baron, M. Gruyters, and H. Winter
 “Surface structure of ultrathin Fe films on Cu(001) revisited”
 Phys. Rev. Lett. 95 (2005) 087601
 15. M. Baron, T. Bernhard, M. Gruyters, and H. Winter
 “Studies on scattering of fast H and He from Fe films grown on Cu(001)”
 Surf. Sci. im Druck (2006)
 16. T. Bernhard, M. Baron, M. Gruyters, and H. Winter
 “Structure and magnetism of bcc(110) Fe films via ion beam triangulation and spin polar-
 ized electron capture”
 Surf. Sci. 600 (2006) 1877

Danksagung

Aufrichtig bedanken möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. H. Winter zum einen für die interessante Aufgabenstellung und die Bereitstellung des „NESA“-Labors zur Durchführung der Experimente, zum anderen für die unermüdliche Unterstützung bei physikalischen Fragen und experimentellen Problemen.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. habil. R. Pfandzelter, der mir in der (viel zu) kurzen Phase unserer Zusammenarbeit die konzeptionelle Herangehensweise zur experimentellen Klärung physikalischer Fragestellungen vermitteln konnte.

Vielen Dank auch an Herrn Dr. habil. M. Gruyters für die gute Kooperation in den Projekten Co und Fe auf Cu(001).

Für die technische Unterstützung bei Konstruktion, Umbauten, Reparaturen etc. bedanke ich mich bei Herrn Dipl. Ing. K. Maass und Dipl. Phys. R. A. Noack.

Herrn Dr. Z. L. Fang gilt mein Dank für den tatkräftigen Einsatz bei der Bewältigung des Laborumzuges nach Adlershof und für die freundschaftliche Zusammenarbeit beim IILEED-Projekt.

Bedanken möchte ich mich auch bei Herrn Dipl. Phys. M. Baron für die gemeinschaftlich erarbeitete Konzeption zur quantitativen Interpretation von IST-Kurven.

Herrn J. Seifert danke ich für die zeitliche Unterstützung während der abschließenden Phase meiner Promotionsarbeit sowie für die Programmierung und Weiterentwicklung des „istGUI“-Codes.

Mein tief empfundener Dank gilt meinen beiden Kindern Fenja und Levin, die mir durch ihre Lebensfreude zeigen, dass Physik nicht alles im Leben ist, und mich so über enttäuschende Labortage unbewusst hinwegtrösten konnten.

Sehr dankbar bin ich meiner Frau Birgit, die sich über den gesamten Zeitraum meiner Dissertation selbstlos um die alltäglichen Belange unserer Familie kümmerte. Ohne Sie wäre die Fertigstellung dieser Arbeit nicht möglich gewesen.

Herzlichen Dank an meine Eltern, die mir das Studium der Physik ermöglichten, mich oftmals zeitlich entlasteten und unsere Familie in allen Lebenslagen verständnisvoll unterstützen.

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich, diese Arbeit selbständig und ohne unerlaubte Hilfe angefertigt zu haben.

Ich habe mich nicht an anderer Stelle um einen Doktorgrad beworben und besitze auch keinen entsprechenden Doktorgrad.

Ich erkläre hiermit die Kenntnisnahme der dem Verfahren zugrunde liegenden Promotionsordnung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I der Humboldt-Universität zu Berlin.

Berlin, 14. Juli 2006

Tobias Bernhard